

Sonderdruck vom DESY-Bericht 68/27, Mai 1968

Deutsches Elektronen-Synchrotron, Hamburg

OPTISCH ANGEREGTE PLASMAEFFEKTE

AN ALUMINIUM

IM ULTRAHOCHVAKUUM

B. Feuerbacher

München

März 1968

OPTISCH ANGEREGTE PLASMAEFFEKTE
AN ALUMINIUM
IM ULTRAHOCHVAKUUM

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung der Doktorwürde
der
Hohen Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Ludwig-Maximilians-Universität
zu München

vorgelegt
von
Berndt Feuerbacher
aus
Dresden

München
März 1968



1. Berichterstatter: Privatdozent Dr. W. Steinmann

2. Berichterstatter: Prof. Dr. W. Rollwagen

Tag der mündlichen Prüfung: 15. Mai 1968

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Einleitung	1
1 Optische Plasmaeffekte	3
2 Apparative Anlagen	
2.1 Übersicht	7
2.2 Lichtquelle	7
2.3 Monochromator	9
2.4 UHV-System	10
2.5 Reflektometer	12
2.6 Aufdampfung und Schichtdickenmessung	20
3 Theoretische Aspekte	
3.1 Allgemeines	22
3.2 Das optische Plasmon	22
3.3 Plasmaeffekt in Reflexion	25
3.4 Plasmaeffekt in Photoemission	29
4 Messungen	
4.1 Plasmaeffekt in Reflexion	32
4.2 Plasmaeffekt in Photoemission	35
4.3 Oxydationseffekte	37
Zusammenfassung	39
Literaturverzeichnis	41



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41555415_0044

Einleitung

Die Untersuchungen zu den Plasmaeffekten an Festkörpern werden meist mit Hilfe der diskreten Energieverluste von Elektronen durchgeführt. Zur Deutung der Verlustspektren ist dann die Kenntnis der optischen Konstanten des Mediums wichtig. Es besteht aber auch die Möglichkeit, Plasmaeffekte auf direktem Weg optisch zu messen. Dabei hat man den Vorteil, daß eine gute Auflösung mit wesentlich einfacheren Mitteln erreicht werden kann als bei der Messung mit schnellen Elektronen, wo sich der Meßwert als Differenz zweier großer Werte ergibt.

Man kann die Plasmaresonanz auf optischem Weg in Absorption, Reflexion, Photoemission und in der Streustrahlung beobachten. Die vorliegende Arbeit hat es sich zur Aufgabe gemacht, den optischen Plasmaeffekt in Reflexion und in der Photoemission zu untersuchen. In Reflexion war der Effekt bis jetzt noch gar nicht gefunden worden, während in der Photoemission nur wenige Messungen für spezielle Fälle vorlagen.

Die Messungen dieser Arbeit wurden an Aluminium durchgeführt, da es sich in seinem dielektrischen Verhalten in der Umgebung der Plasmafrequenz in guter Näherung als freies Elektronengas kleiner Dämpfung beschreiben läßt und damit vom theoretischen Standpunkt aus interessant ist. Seine Plasmafrequenz liegt im Vakuum-Ultraviolett wie die der meisten Materialien. Als Lichtquelle diente die Synchrotronstrahlung, die sich für solche Messungen besonders eignet, da sie in dem fraglichen Wellenlängenbereich ein Kontinuum hochpolarisierten Lichtes bietet. Da es sich bei den hier betrachteten Plasmaresonanzen um einen Oberflächeneffekt handelt, erweist es sich als notwendig, die Messungen unter Ultra-Hochvakuumbedingungen durchzuführen. Zu diesem Zweck wurde ein Reflektometer gebaut, das im Ultra-Hochvakuum betrieben und mit dem in beiden Polarisationsrichtungen gemessen werden kann.

Die Arbeit gliedert sich in fünf Abschnitte.

Abschnitt 1 gibt einen Überblick über die optischen Plasmaeffekte (ohne die Plasmastreustrahlung) und einige theoretische und experimentelle Arbeiten dazu. Teil 2 beschreibt die apparativen Anlagen, mit besonderer Betonung des Reflektometers, welches eine neuartige Konstruktion darstellt. In Abschnitt 3 wird kurz über die Eigenschaften des optischen Plasmons berichtet sowie über die Näherungswege zur Berechnung der Plasmaresonanzen in Reflexion und Photoemission. Der 4. Abschnitt bringt die Messungen.

1 Optische Plasmaeffekte

Plasmaschwingungen in Festkörpern wurden experimentell zuerst durch die diskreten Energieverluste beobachtet, welche schnelle Elektronen bei der Streuung an Festkörpern erleiden ⁽¹⁾. Mit Hilfe der Theorie von Bohm und Pines ⁽²⁾ konnten sie auf die langreichweitige Coulombwechselwirkung der Elektronen zurückgeführt werden. Ritchie ⁽³⁾ hat später gezeigt, daß außer Volumenplasmaschwingungen auch Oberflächenplasmaschwingungen angeregt werden können.

Plasmaschwingungen sind als Dichteschwingungen der Elektronen im Kristall stets longitudinal. Als Voraussetzung für das Auftreten solcher Schwingungen (Ausbreitungsvektor k in Richtung der Auslenkung) erhält man aus den Maxwell'schen Gleichungen

$$\epsilon_L(\omega, k) = 0, \quad (1)$$

wobei ϵ_L die longitudinale Dielektrizitätskonstante ist. Da optische Schwingungen stets transversal sind, ist es unmöglich, daß diese an die longitudinalen Plasmaschwingungen ankoppeln. Im Fall einer dünnen Schicht gilt das jedoch nicht mehr: In der Richtung senkrecht zur Schichtebene ist das Plasma räumlich begrenzt. Durch die dabei entstehende Unsicherheit im Impuls erhält das Plasmon einen gewissen Grad an Transversalität, der ein Ankoppeln an elektromagnetische Felder möglich macht. Ferrell ⁽⁴⁾ hat theoretisch vorausgesagt, daß ein solches optisches Plasmon möglich ist, und zwar für den Fall der Plasmaresonanz in der Übergangsstrahlung. Dabei zerfallen die durch schnelle Elektronen angeregten Plasmonen teilweise in Photonen, so daß eine Strahlung in der Umgebung der Plasmafrequenz ω_p mit

$$\epsilon(\omega_p) = 0 \quad (2)$$

auftritt (der Einfachheit halber ist ein isotropes Medium vorausgesetzt). Hier ist

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_T(\omega, 0) = \epsilon_L(\omega, 0) \quad (3)$$

gesetzt, denn der Wellenvektor des Lichts ist bei den hier auftretenden Frequenzen klein gegen die Ausdehnung der Brillouin-Zone und kann deshalb vernachlässigt werden. Für $k = 0$ verschwindet der Unterschied zwischen longitudinalen und transversalen Schwingungen. Diese Plasmastrahlung konnte an Ag^(5,7), Al⁽⁶⁾ sowie an anderen Metallen⁽⁸⁾ experimentell beobachtet werden.

Das optische Plasmon kann nicht nur in Photonen zerfallen, sondern auch durch elektromagnetische Strahlung angeregt werden. Die Anregung der Plasmaschwingung äußert sich in einer erhöhten Absorption, die nur bei p-polarisiertem Licht (elektrischer Vektor parallel zur Einfallsebene), nicht jedoch bei s-polarisiertem Licht (E-Vektor senkrecht zur Einfallsebene) auftritt. Der Grund dafür ist leicht einzusehen: Wie erwähnt ist nur eine Plasmaschwingung senkrecht zur Oberfläche einer dünnen Schicht optisch anregbar. Die elektrische Feldstärke muß also eine Komponente in Richtung der Foliennormalen haben, um ein Plasmon anregen zu können. Das ist für s-Licht nie der Fall, jedoch für p-Licht bei schrägem Einfall (Fig. 1).

Das spektrale Maximum in der Absorption ergibt ein Minimum in der Transmission dünner Schichten, das von der Polarisationsrichtung des eingestrahnten Lichts und dem Einfallswinkel abhängig ist. Auch in Reflexion zeigt sich ein Effekt. Bei der Plasmafrequenz erhält man ein spektrales Maximum in der Reflektivität, welches auf der Anregung des optischen Plasmons und seinem Zerfall in Photonen beruht. Dieses Maximum in der Reflexion wurde zuerst von Ferrell und Stern⁽⁹⁾

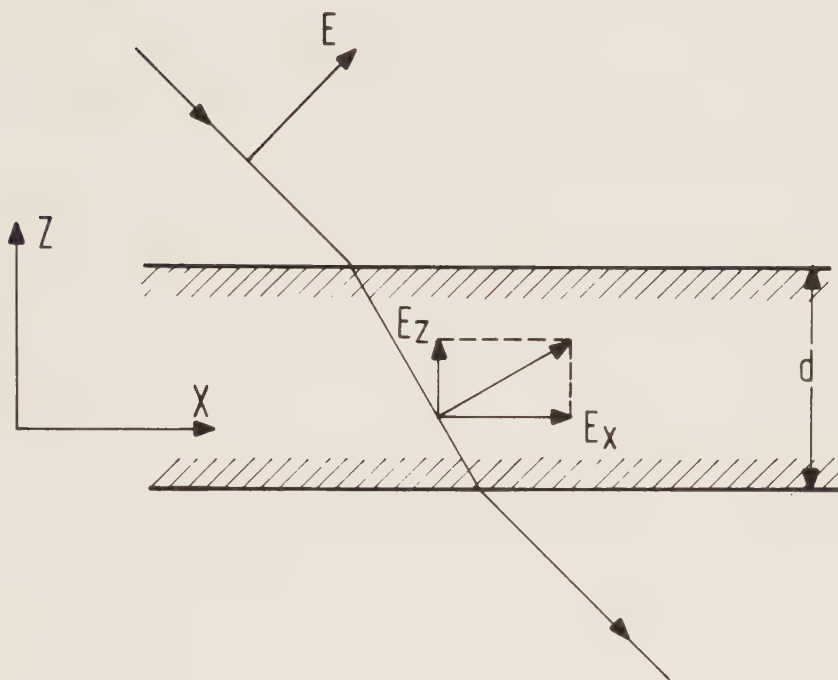


Abb. 1 Feldstärken des Lichts in p-Polarisation

sowie Yamaguchi ⁽¹⁰⁾ vorausgesagt. Formeln für die Struktur in Absorption und Transmission wurden von verschiedenen Autoren ⁽¹⁰⁻¹³⁾ angegeben.

Die verminderte Transmission bei der Plasmafrequenz (Plasmaresonanzabsorption) wurde zuerst von Mayer und Thomas ⁽¹⁴⁾ und Deichsel ⁽¹⁵⁾ an Kaliumschichten gefunden, jedoch von diesen Autoren noch nicht als Plasmaeffekt gedeutet. Messungen mit dem Ziel, die theoretischen Voraussagen zu prüfen, wurden von Yamaguchi ⁽¹⁰⁾ und McAlister und Stern ⁽¹²⁾ an Ag, von Ejiri und Sasaki ⁽¹⁶⁾ und Skibowski ^(17,18) an Al, von Brambring ⁽¹⁹⁾ an K sowie Mayer und Thomas ⁽¹⁴⁾ und Tittel ⁽²⁰⁾ an Mg durchgeführt. In Reflexion ist der Effekt schwerer zu finden, da in der Nähe der Plasmafrequenz die Reflektivität zu größeren Wellenlängen schnell ansteigt. Die Erhöhung zeigt sich, falls nicht extrem dünne Schichten verwendet werden, nur als Schulter im Anstieg der Reflektivität. In der Messung von Yamaguchi ⁽¹⁰⁾, der als einziger eine Reflexionsmessung veröffentlicht hat, ist dies nur schwach angedeutet. Die vorliegende Arbeit berichtet über eine Untersuchung, in der die Plasmaresonanz in der Reflektivität einer dünnen Al-Schicht gefunden werden konnte.

Der Zerfall eines Plasmons kann auch zur Einzelanregung eines Elektrons führen. Da die Plasmaenergie, definiert durch

$$E_p = \hbar \omega_p \quad (4)$$

für die meisten Materialien größer als die Austrittsarbeit ist, kann dies zur Emission des angeregten Elektrons führen. Bei Anregung des Plasmons durch schnelle Elektronen ist der Effekt schwer zu messen, da die emittierten (Sekundär-)Elektronen eine Energie haben,

die klein ist gegen die der anregenden. Einfacher liegen die Verhältnisse bei optischer Anregung. Man erhält eine erhöhte Photoemission, wenn man mit p-polarisiertem Licht der Plasmafrequenz unter schrägem Einfall bestrahlt. Experimentell wurde dieser sogenannte vektorielle Photoeffekt schon 1936 von Ives und Briggs ⁽²¹⁾ an K, Rb und Cs gefunden. Diese Messungen wurden in photoelektrischen Zellen vorgenommen, wodurch die Schichtdicke unbekannt blieb und der Einfallswinkel nicht variiert werden konnte. Später wurde der Effekt noch einmal von Mayer und Thomas ⁽¹⁴⁾ an K gefunden. Die dabei verwendeten Schichten waren nur ein bis zwei Atomlagen dick, so daß man kaum von einem kollektiven Verhalten der Elektronen in Richtung der Schichtnormalen sprechen kann. Die Ergebnisse konnten zu dieser Zeit noch nicht im Rahmen der Plasmatheorie behandelt werden. Eine neuere Messung wurde von Steinmann und Skibowski ^(22,17,18) an Al durchgeführt, wobei unter verschiedenen Einfallswinkeln gemessen werden konnte. Es zeigte sich dabei, daß der Plasmaeffekt durch die Oxydschicht der an Luft präparierten Photokathoden so stark abgeschwächt wurde, daß die zugehörige Struktur in der Photoemission durch die wegen des Brewsterminimums auftretende fast völlig überdeckt wurde. Deshalb wurden die hier beschriebenen Messungen im Ultra-Hochvakuum durchgeführt, wodurch zum ersten Mal an Aluminium ein ähnlich starker Effekt wie bei den Alkalimetallen nachgewiesen werden konnte. Durch Messung bei mehreren Einfallswinkeln können die Ergebnisse mit den Voraussagen der Plasmatheorie verglichen werden.

2 Apparative Anlagen

2.1 Übersicht

In diesem Kapitel sollen die apparativen Anlagen beschrieben werden, die zur Messung benutzt wurden. Besonderes Gewicht wird dabei auf das Reflektometer gelegt. Die anderen Teile der Apparatur, nämlich Lichtquelle, Monochromator und elektronischer Teil, sind bereits an anderer Stelle beschrieben ^(17,23). Sie werden nur in ihren für die vorliegende Arbeit wichtigsten Punkten kurz behandelt.

Eine Übersicht über die Anlage zeigt Abb. 2. Sie stellt einen Schnitt in der Synchrotronebene dar. Das tangential zur Elektronenbahn des Synchrotrons abgestrahlte Licht gelangt durch ein evakuiertes Strahlrohr auf das Gitter des Monochromators. Von diesem wird es auf den Austrittsspalt fokussiert. Hinter dem Spalt befindet sich der UHV-Teil mit dem Reflektometer.

2.2 Lichtquelle

2.21 Charakteristika der Synchrotronstrahlung

Die Eigenschaften der Synchrotronstrahlung des Deutschen Elektronen-Synchrotrons in Hamburg sind von Haensel und Kunz ⁽²⁴⁾ ausführlich beschrieben worden.

Im vorliegenden Fall interessiert speziell der Anteil der Strahlung, der auf das Gitter des Monochromators fällt und sein Polarisationsgrad. Dies wurde von Skibowski ⁽¹⁷⁾ für ein Gitter in 40 m tangentialem Abstand von der Sollbahn der Elektronen und eine ausgeleuchtete Fläche von 30 x 30 mm berechnet. Das Ergebnis zeigt Abb. 3. Eine Abschätzung der absoluten Intensität bei normalen Betriebsbedingungen (6 GeV, 3 mA Strahlstrom)

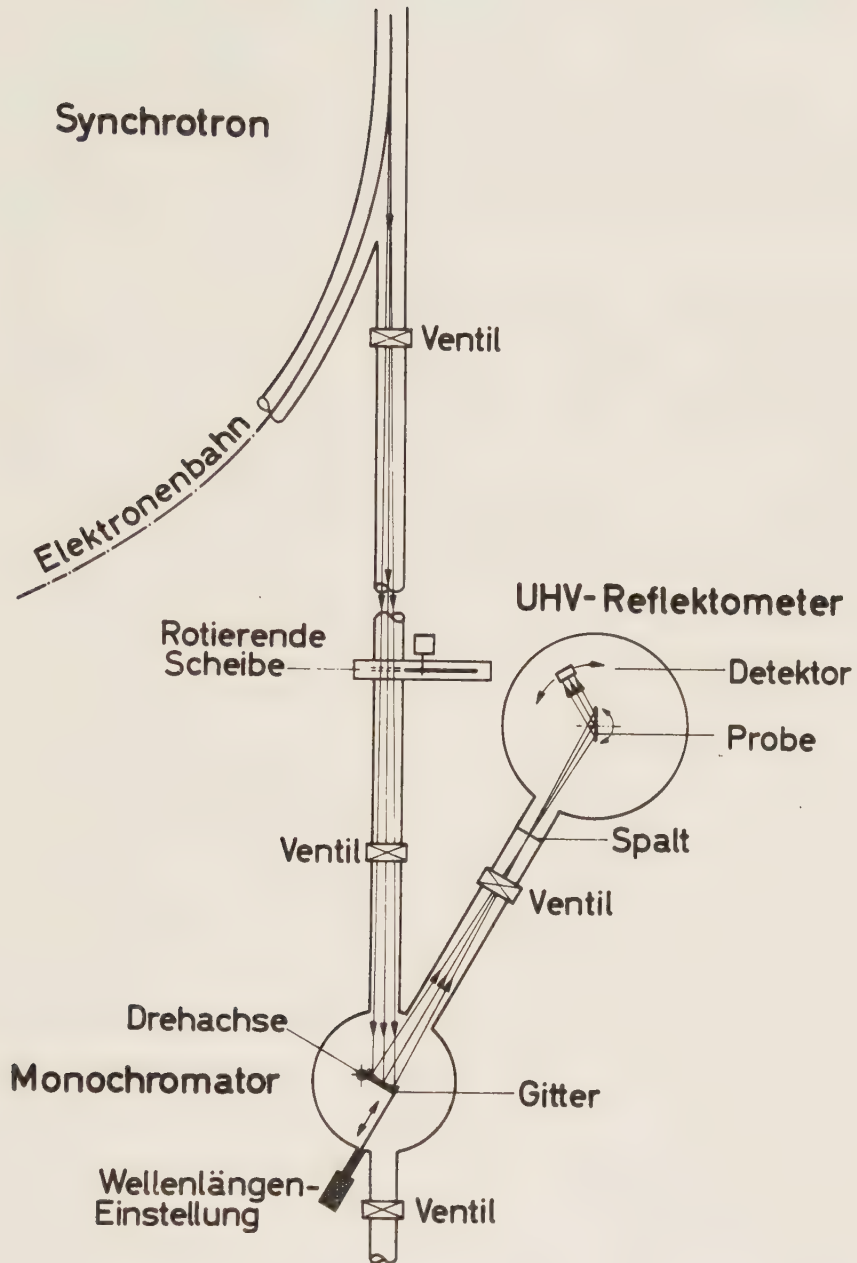


Abb. 2 Übersicht über die apparativen Anlagen

ergibt für eine Wellenlänge von $700 \text{ \AA}$ ca.
 $2 \times 10^{10} \text{ Photonen} \cdot \text{sec}^{-1} \cdot \text{\AA}^{-1}$.

Den Polarisationsgrad des auf das Gitter fallenden Lichts zeigt Abb. 4. Für kleinere Elektronenenergien erhält man einen höheren Polarisationsgrad.

2.22 Stabilität und Referenzsignal

Für die Durchführung von Reflexionsmessungen ist eine hohe Stabilität der Lichtquelle Voraussetzung. Diese Voraussetzung ist bei der Synchrotronstrahlung des DESY normalerweise nicht erfüllt. Zwar wird die Maximalenergie der Elektronen auf wenige Promille konstant gehalten, aber die Zahl der beschleunigten Elektronen schwankt von Puls zu Puls.

Um diese Schwankungen kompensieren zu können, wird ein Referenzsignal im Wellenlängenbereich des sichtbaren Lichts gewonnen, das der Anzahl der beschleunigten Elektronen proportional ist ⁽²⁵⁾.

Allerdings versagt dieses Referenzsignal, wenn an der Verteilung der Elektronen während des Beschleunigungszyklus etwas geändert wird, etwa durch Ausschluß eines Teils für Hochenergieexperimente. Dabei ändert sich die Strahlungsintensität bei sehr langen Wellenlängen, also für das Referenzsignal, praktisch nicht, während bei kürzeren Wellenlängen beachtliche Änderungen auftreten können. Dem wird dadurch begegnet, daß man für das Experiment nur den Teil des Beschleunigungszyklus verwendet, der durch die Hochenergieexperimente nicht verändert wird. Mit Hilfe einer Scheibe, die sich synchron zum Magnetfeld des Beschleunigers im Strahlrohr dreht ("Rotierende Scheibe" in Abb. 2) ⁽²⁶⁾ und aus der ein Sektor ausgeschnitten ist, kann von der Beschleunigungszeit von 10 msec ein Teil, etwa die letzten beiden Millisekunden, abgeschnitten werden.

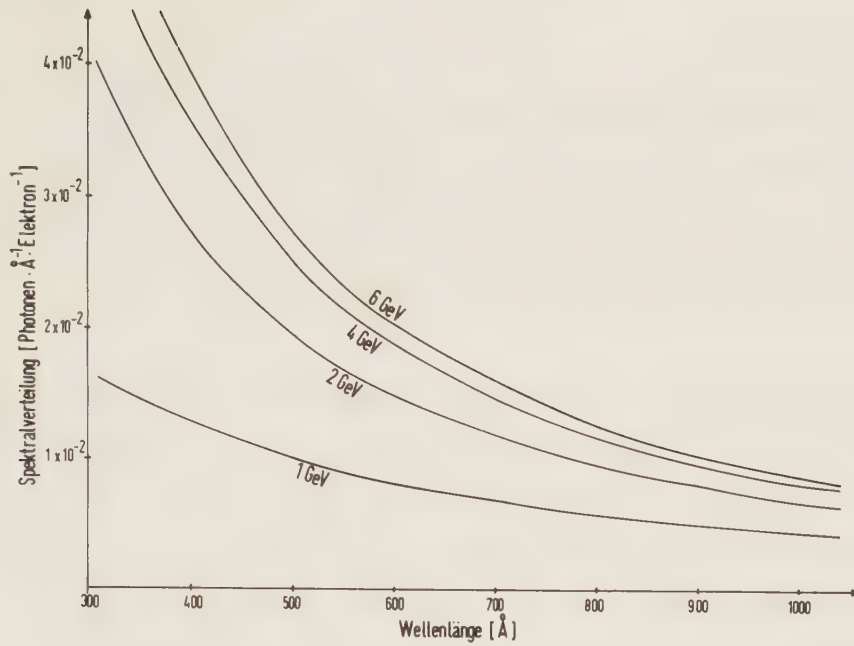


Abb. 3 Spektralverteilung der auf das Gitter fallenden Synchrotronstrahlung

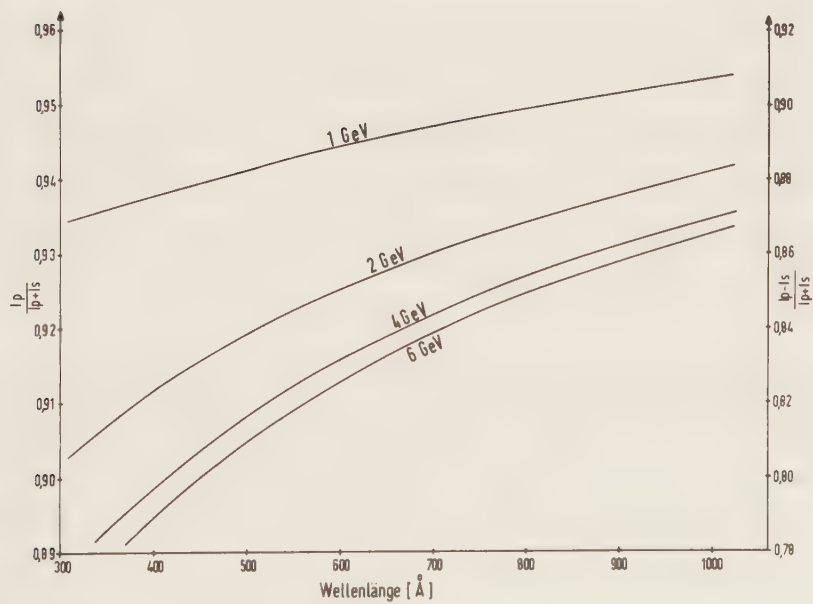


Abb. 4 Polarisationsgrad der auf das Gitter fallenden Synchrotronstrahlung

2.3 Monochromator

Der verwendete Monochromator wurde von Skibowski (17,23) beschrieben. Er ist in einer modifizierten Wadsworth-Montierung aufgebaut. Sein Gitter hat einen Krümmungsradius von 2217,6 mm und 1200 Striche pro mm. Der Blaze liegt bei 600 Å in der ersten Ordnung.

Das Spektrum, das hinter dem Austrittsspalt gemessen wird, zeigt die mittlere Kurve in Abb. 5. Ohne Filter wird der Monochromator zwischen 450 und 1000 Å benutzt. Die beiden seitlichen Kurven zeigen, wie der Wellenlängenbereich nach beiden Seiten vergrößert werden kann. Mit einem Filter, das aus einer 2000 Å dicken Tellurschicht auf einer 1000 Å dicken Aluminiumfolie (als Träger) besteht, kann man den Bereich zwischen 320 - 550 Å streulichtfrei machen. Will man bei Wellenlängen über 1000 Å messen, so verwendet man eine 1 mm dicke LiF-Scheibe als Filter, um höhere Ordnungen auszuschließen. Ab 1400 Å wird die Quantenausbeute des verwendeten Detektors, der weiter unten (2.52) beschrieben wird, zu klein.

Bei einer Lineardispersion von 7 Å/mm und einer Spaltbreite von 0,5 mm ist der durchgelassene Wellenlängenbereich des Monochromators 3,5 Å. Die Divergenz des Austrittsbündels ist kleiner als $2,5 \cdot 10^{-2}$ rad und wird durch eine Blende vor dem Reflektometer noch auf $1 \cdot 10^{-2}$ rad verkleinert.

Die Wellenlängeneichung wurde mit Gas-Absorptionslinien durchgeführt (27). Der Polarisationsgrad hinter dem Austrittsspalt wurde ebenfalls bestimmt (27) und zeigt gute Übereinstimmung mit den aus der Synchrotronstrahlung berechneten Werten.

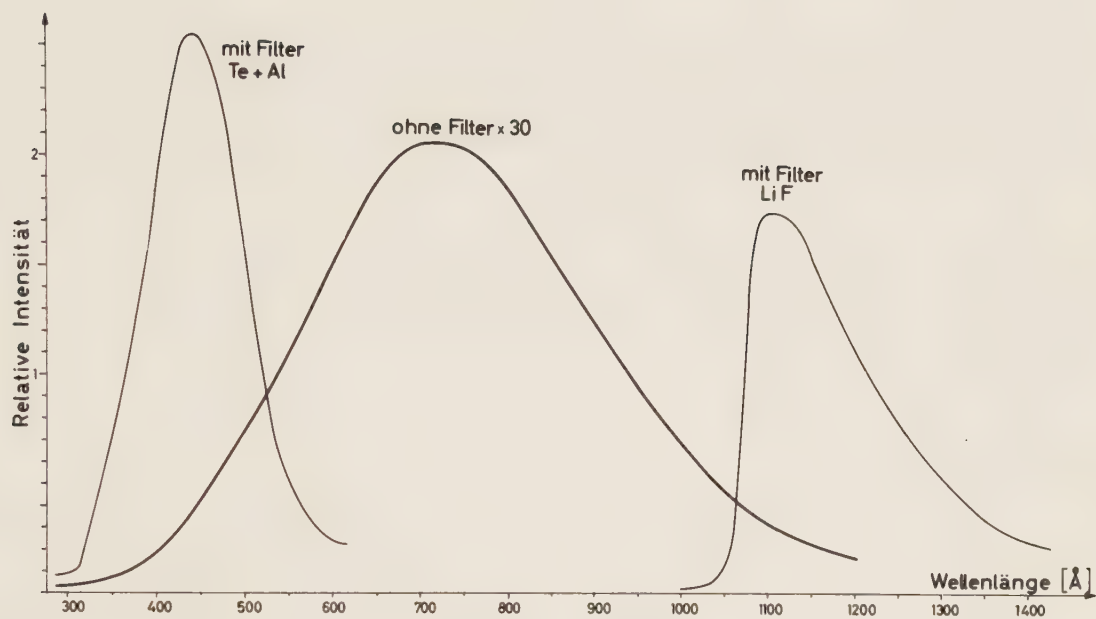


Abb.5 Spektrum hinter dem Austrittsspalt des Monochromators

2.4 UHV-System

Abb. 6 zeigt eine Skizze des UHV-Systems. Es besteht hauptsächlich aus einer kommerziellen UHV-Anlage vom Typ Varian VT 102. Es wird mit Kupfer-Conflat-Dichtungen gedichtet. Die beiden Hauptflansche F 1 und F 2 sind mit Cu-Draht gedichtete Wheelerflansche.

Die Verbindung zum Monochromator wird durch das Ventil V 1 hergestellt. Das Licht fällt durch den Spalt S auf die Probe im Reflektometer R. Senkrecht unter der Probe befindet sich die Aufdampfquelle E.

Der Druck im Rezipienten wird an der Meßstelle M 1 bestimmt. Zwei weitere Druckmeßstellen M 2, M 3 sind eingezeichnet.

2.41 Pumpen

Das System VT 102 ist mit einer Ionengetterpumpe IGP und einer Titansublimationspumpe TSP bestückt. Die Ionengetterpumpe hat eine Leistung von 250 l/sec. Als Vorpumpe dient eine Turbomolekularpumpe TMP mit 500 l/sec Saugleistung. Mit ihrer Hilfe wird das System vom Atmosphärendruck auf den Druck gebracht, bei dem die Getterpumpe zu arbeiten beginnt, nämlich 1×10^{-4} Torr. Während des Ausheizens bleibt das Ventil V 1 geöffnet. Danach dient die Turbopumpe zum differentiellen Pumpen vor dem Austrittsspalt S.

Das Arbeiten mit einer Ionengetterpumpe und einem offenen Multiplier bringt besondere Schwierigkeiten mit sich: Die durch die Pumpe vagabundierenden Ionen und Elektronen rufen am Multiplier einen sehr hohen Dunkelstrom hervor. Ohne Schutzmaßnahmen beträgt dieser Dunkelstrom bei Drucken von 10^{-7} Torr ein Vielfaches des Stromes, der durch

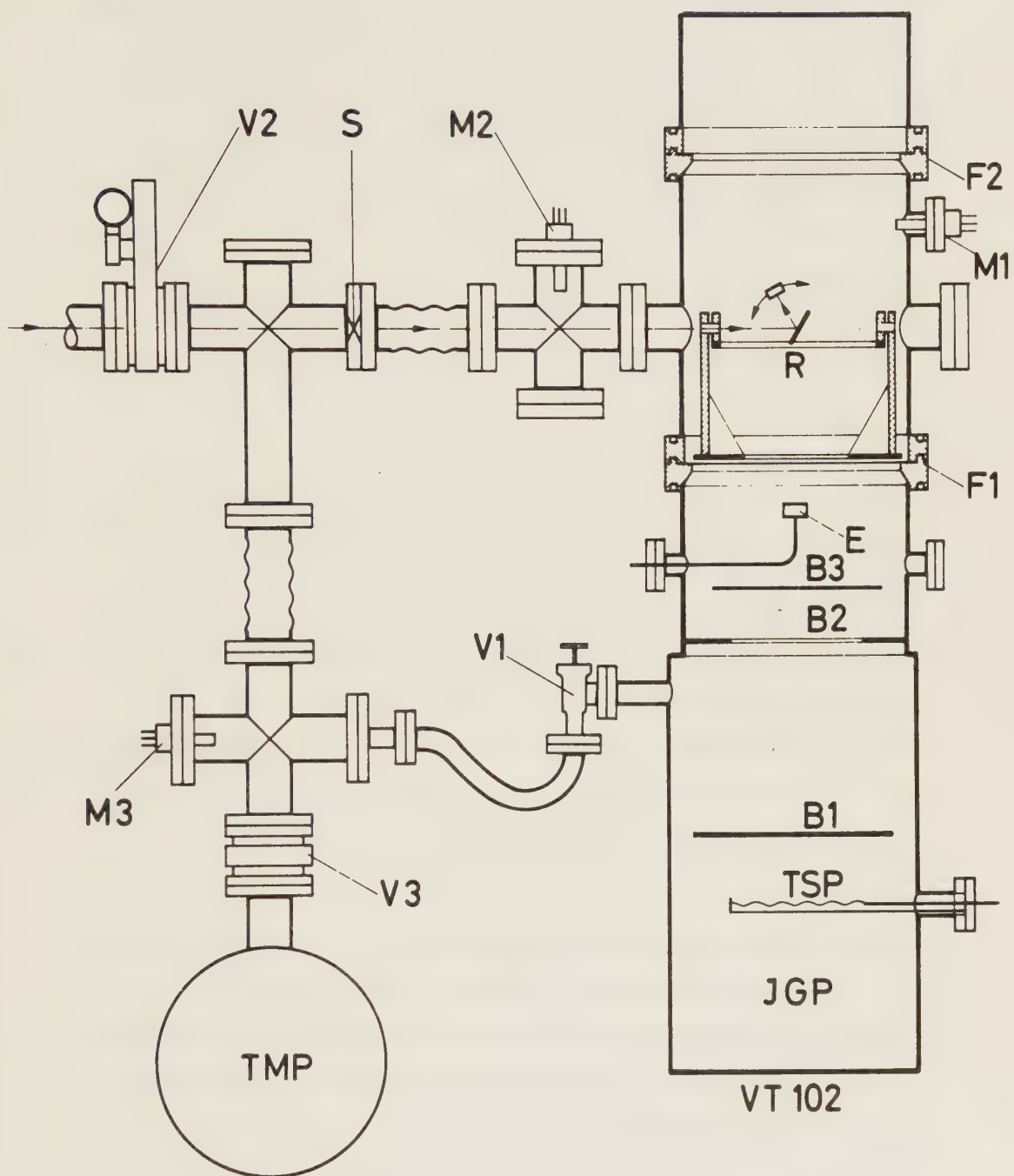


Abb. 6 Übersicht über das UHV-System

das einfallende Licht erzeugt wird. Der Versuch, den Dunkelstrom durch Netze oder Platten auf hohen Potentialen (bis 10 kV) zu verkleinern, die zwischen Pumpe und Detektor die geladenen Teilchen abfangen bzw. abstoßen sollten, scheiterte. Schließlich konnte der Störeffekt durch ein System von Blenden B 1 bis B 3, das die Pumpe vom Rezipienten optisch abschließt, so verringert werden, daß er bei Drucken unter 1×10^{-8} nicht mehr meßbar ist. Allerdings macht er sich bei höheren Drucken noch störend bemerkbar.

2.42 Drucke

Sämtliche Druckmessungen wurden mit offenen Ionisationsmeßröhren (Nude Ion Gauge) der Firma Varian durchgeführt. Sie wurden mit dem vom Hersteller angegebenen Heizstrom betrieben. Das geschlossene, vollständig mit Kupfer gedichtete System erreicht einen Basisdruck im 10^{-11} Torr-Bereich. So, wie es hier verwendet wird, ist das UHV-System jedoch durch den Austrittsspalt ständig mit dem schlechteren Vakuum des Monochromators verbunden, in dem der Druck bei $5 \cdot 10^{-7}$ Torr liegt.

Um den Leitwert des Spaltes klein zu halten, wurden die Spaltbacken nicht als Schneiden, sondern als Flächen ausgebildet, so daß der Spalt einen langen Kanal darstellt. Die Abmessungen des hier verwendeten Spalts waren

Breite	0,5	mm
Höhe	3	mm
Tiefe	10	mm

Berechnungen ergeben ⁽²⁸⁾, daß sich an einer solchen Anordnung eine Druckstufe von 2 - 3 Größenordnungen aufbauen läßt. Das läßt sich auch experimentell verwirklichen.

Bei den vorliegenden Messungen lag der Basisdruck im UHV-System bei $1 - 2 \cdot 10^{-9}$ Torr, während vor dem Spalt ein Druck von 1×10^{-6} Torr herrschte. Bei Druckerhöhung vor dem Spalt steigt der Druck im Reflektometer entsprechend mit, woraus man schließen kann, daß der Enddruck hauptsächlich durch den Zulauf am Spalt bestimmt ist.

Der normale Pumpzyklus besteht aus einer Vorpumpzeit von 2^h , einer Ausheizzeit von $6^h - 8^h$ und einer Abkühlungszeit von 6^h . Die Ausheiztemperatur für die Pumpe ist 180°C . Der Rezipient wird aus Rücksicht auf den Photomultiplier nicht über 150°C geheizt. Es zeigte sich, daß bei dem durch den Zulauf bedingten Enddruck und der niedrigen Ausheiztemperatur statt der Cu-Dichtung am Hauptflansch F 1 (Abb. 5) eine Vitondichtung verwendet werden kann, was die Handhabung stark vereinfacht.

2.5 Reflektometer

2.51 Aufgaben des Reflektometers

Ein Reflektometer dient zur Messung der Reflektivität einer Probe bei verschiedenen Einfallswinkeln. Es besteht aus einem Probenhalter und einem Detektor, die um eine gemeinsame Achse drehbar angeordnet sind. Für die Einstellung der Winkel sind zwei Möglichkeiten beschrieben: erstens feste Verbindung zwischen Proben- und Detektordrehung durch Winkelverdopplermechanismus ⁽²⁹⁾ oder zweitens Winkeleinstellung an der Probe und Nachführen des Detektors ⁽³⁰⁾.

Außer der Messung der reflektierten Intensität ist zur Bestimmung einer Reflektivität noch die Messung der auf die Probe einfallenden Intensität notwendig.

Diese wird meist so ausgeführt, daß die Probe aus dem Strahlengang genommen und der Detektor in den direkten Strahl gebracht wird.

Zu diesen allgemeinen Anforderungen an ein Reflektometer kommen noch spezielle, die durch die Verwendung der Synchrotronstrahlung als Lichtquelle im VUV bedingt sind. Diese sind

1. Um den hohen Polarisationsgrad der einfallenden Strahlung nützen zu können, soll es möglich sein, Reflektivitäten in beiden Polarisationsrichtungen zu bestimmen. Da die Polarisations-ebene der Synchrotronstrahlung fest ist, müssen dazu Probe und Multiplier um die Achse des einfallenden Lichts um 90° geschwenkt werden.
2. Die ganze Anordnung soll UHV-tauglich sein, Das bedeutet, daß die Mechanik einfach und unkompliziert sein muß und daß nur bestimmte Materialien verwendet werden können.

2.52 Detektor

Als Detektor wird ein offener Photomultiplier vom Typ Bendix M 306 verwendet ⁽³¹⁾. Er zeichnet sich vor anderen offenen Multipliern (Cu-Be-Multiplier) durch hohe Stabilität gegen Belüftung aus. Gegenüber einem geschlossenen Multiplier mit Fluoreszenzschicht hat er entscheidende Vorteile:

1. Wegen der hohen Austrittsarbeit der Wo-Kathode ist der Multiplier für Wellenlängen über $1500 \text{ \AA}$ unempfindlich. Dadurch wird das langwellige Streulicht unterdrückt, das gerade im Fall eines kontinuierlichen Spektrums Schwierigkeiten bereitet. Aus demselben Grund liegt der Dunkelstrom des Multipliers bei Zimmertemperatur bei 10^{-13} A und damit 2 Größenordnungen unter dem

von Multipliern, die im Bereich des sichtbaren Lichts empfindlich sind.

2. Über das Verhalten von Fluoreszenzschichten beim Ausheizen ist nicht viel bekannt. Natriumsalizylat, der im VUV meist verwendete Fluoreszenzstoff, zerfällt bei etwa 150 °C. Der Bendix-Multiplier läßt sich bis 200 °C ausheizen.
3. Der Bendix-Multiplier eignet sich vorzüglich zur Messung des Photoeffekts aufgedampfter Metallschichten, und zwar zur Bestimmung der Wellenlängen- und der Winkelabhängigkeit. Dabei wird die zu untersuchende Metallschicht direkt als Photokathode des Multipliers verwendet, so daß der Photostrom an den Dynoden verstärkt wird. Man hat dadurch im Verhältnis zu den sonst bei photoelektrischen Messungen üblichen Strömen ein sehr hohes Meßsignal.

Für eine solche Messung wird an Stelle der Wolframkathode ein Mikroskop-Objektträgerglas von 0,2 mm Dicke gesetzt, das an den Rändern mit Leitsilber bestrichen ist, um Kontakt zwischen dem Kathodenanschluß und der aufgedampften Schicht herzustellen. Das Gitter über der Kathode wird entfernt. Jetzt kann die Metallschicht in situ als Kathode aufgedampft und vermessen werden.

Die letztere Meßmethode stellt eine weitere Anforderung an das Reflektometer: es muß die Möglichkeit bestehen, den Multiplier an die Stelle der Probe zu bringen und um eine Achse, die in der Kathodenoberfläche liegt, drehen zu können.

Die Verwendung des magnetischen Photomultipliers bringt jedoch auch Nachteile mit sich, bedingt durch die Inhomogenität der Empfindlichkeit über die Kathodenfläche. Wie bereits erwähnt, sind zur Bestimmung der Reflexivität zwei Messungen notwendig, die der direkten und

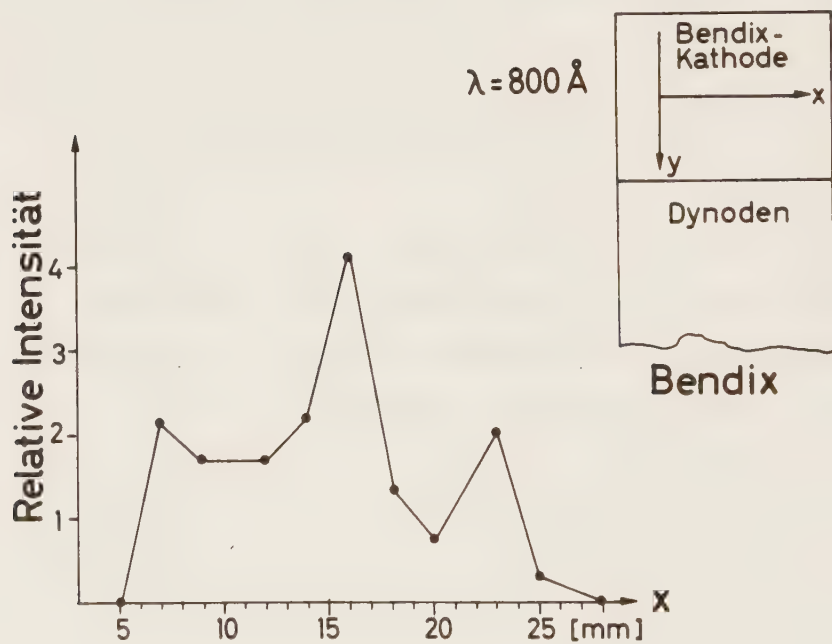
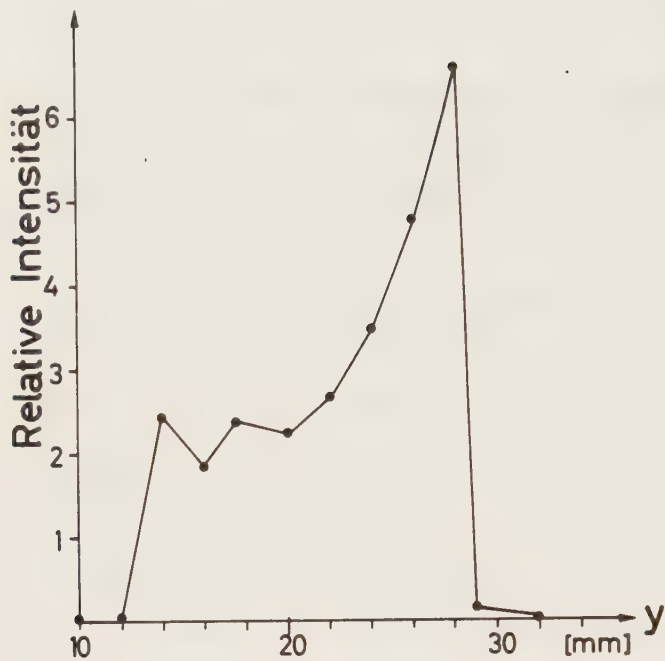


Abb. 7 Empfindlichkeitsverteilung über die Bendixkathode

die der reflektierten Intensität. Der Quotient der beiden Messungen stellt aber nur dann die Reflektivität dar, wenn entweder die Intensität des Lichts über den Strahlquerschnitt oder die Empfindlichkeit über die Photokathode symmetrisch zur Strahlachse ist. Ist beides nicht der Fall, so ruft der an der Probe reflektierte und damit spiegelverkehrte Strahl ein anderes Signal an der Kathode hervor als der direkt einfallende. Man kann nicht erwarten, eine vollkommen symmetrische Lichtverteilung hinter dem Monochromator zu erhalten ⁽³²⁾. Die Empfindlichkeitsverteilung auf der Photokathode wurde vermessen. Abb. 7 zeigt das Ergebnis. Von einer konstanten Empfindlichkeit kann nicht die Rede sein.

Man muß daraus den Schluß ziehen, daß mit diesem Photomultiplier eine echte Reflektivitätsmessung nicht möglich ist. Was wirklich gemessen werden kann, ist das Verhältnis der Reflektivitäten bei verschiedenen Winkeln in einer Polarisationsrichtung. Für die meisten Probleme ist das auch ausreichend. Zur Bestimmung von optischen Konstanten beispielsweise genügt es, bei einem zusätzlichen Winkel zu messen, wenn man nur relative Reflektivitäten messen kann ⁽³³⁾.

Es gibt trotzdem eine Möglichkeit, die Reflektivität absolut zu bestimmen. Dazu ist es nötig, an einem Material, z.B. Glas (das als Substrat zum Aufdampfen verwendet wird), eine vollständige Bestimmung der optischen Konstanten durchzuführen. Mit den gewonnenen Werten kann man dann die Reflektivität bei bestimmten Winkeln berechnen und dadurch das Reflektometer eichen. Statt des direkten Spektrums wird dann vor der Aufdampfung die an Glas reflektierte Intensität gemessen und dieser Wert zur Reduktion der Meßwerte verwendet.

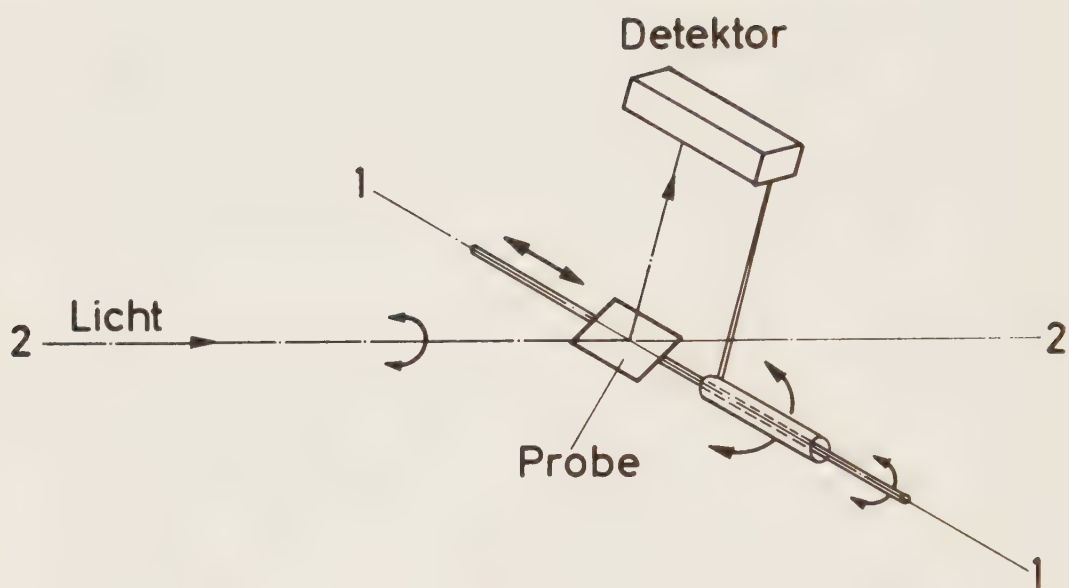


Abb. 8 Prinzip des Reflektometers

Leider wird dem hier besprochenen Problem bei Reflektivitätsmessungen im allgemeinen wenig Beachtung geschenkt. Bei Multipliern mit Fluoreszenzschicht ist es möglich, durch geschickte Beschichtung eine homogene Empfindlichkeit zu erreichen. Dies wird jedoch selten nachgeprüft. Die Bestimmung der optischen Konstanten mit den gefundenen Reflektivitäten führt stets zu irgendwelchen Werten, doch fehlt es an Möglichkeiten, die Konsistenz nachzuprüfen. Dies ist im vorliegenden Fall in beschränktem Umfang möglich, da die Werte für beide Polarisationsrichtungen unabhängig voneinander zur Berechnung der optischen Konstanten verwendet werden können.

2.53 Konstruktion des Reflektometers

Faßt man das bisher besprochene zusammen, so erhält man folgende Grundlage für die Konstruktion des Reflektometers:

1. Drei Drehbewegungen sind notwendig:
 - zwei koaxiale Drehungen für Probe und Detektor (Achse 1 in Abb. 8)
 - eine Drehung um eine Achse, die senkrecht zur ersten Achse in derselben Ebene liegt. (Achse 2)
2. Um die Probe aus dem Strahlgang zu nehmen, ist eine Schiebebewegung notwendig.

Eine einmal eingestellte Anordnung von Probe und Detektor soll bei der Drehung um die Strahlachse (im folgenden S-P-Drehung genannt) erhalten bleiben. Wenn man den Multiplier- und Probenantrieb nicht in der Achse 2 führen will (das wäre eine dreifache koaxiale Führung), muß man den Antrieb bei einer Bewegung um Achse 2 auskoppeln, d.h. man kann nur in einer Stellung, etwa der S-Stellung, den Einfallswinkel verändern.

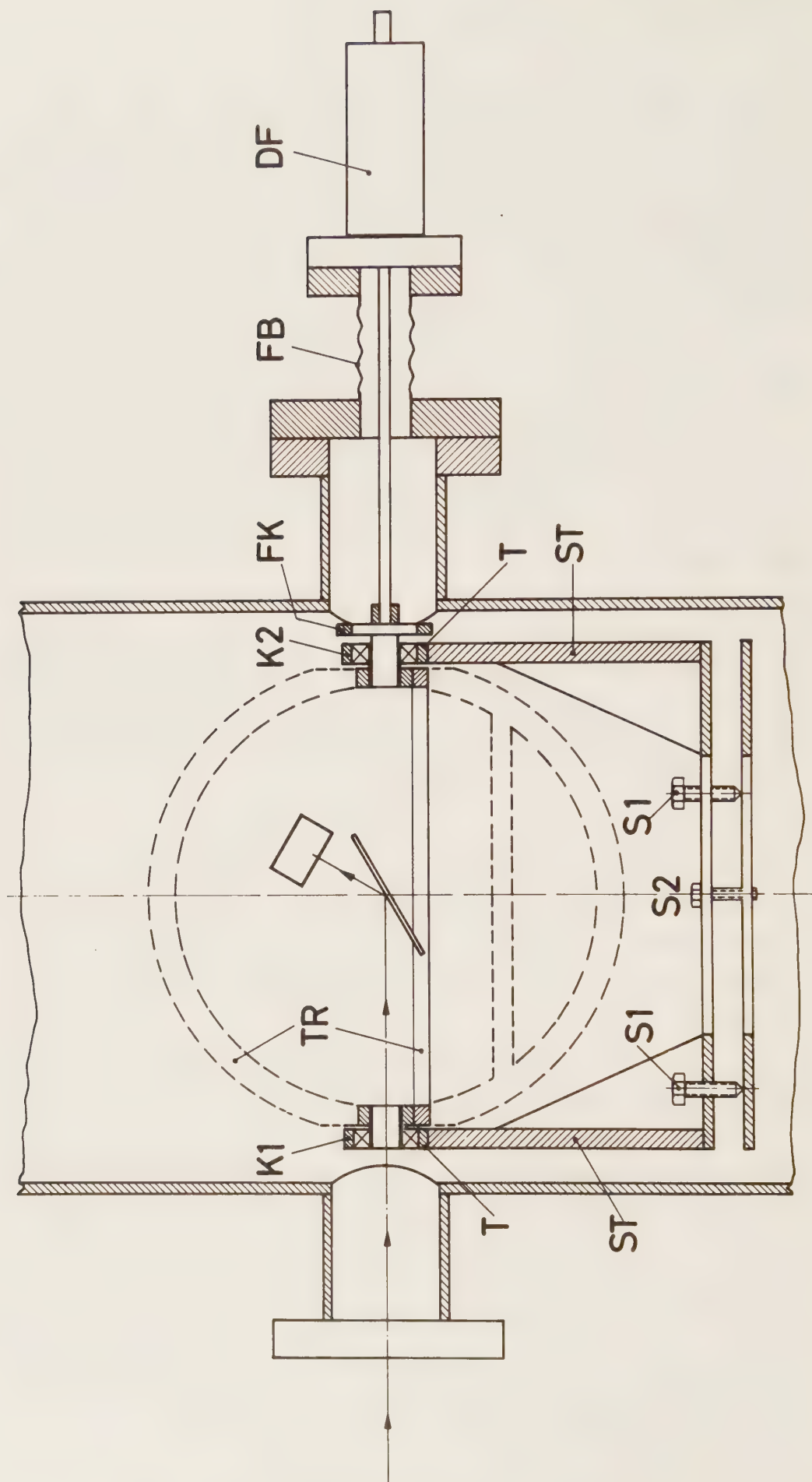


Abb. 9 Grundgestell und S-P-Drehung

Für die Winkeleinstellung wurde keine der beiden in 2.51 erwähnten Methoden verwendet. Der Grund ist einfach: es gibt keine Drehdurchführungen für UHV, die es erlauben, eine Winkeleinstellung reproduzierbar und spielfrei in das Vakuum zu übertragen. Während man im Hochvakuum eine Achse direkt durchführen kann, existieren für UHV nur magnetische Drehdurchführungen oder solche nach dem Katzenschwanzprinzip. Beide sind mit Spiel behaftet, das von dem aufgewandten Drehmoment abhängig ist. Die Konsequenz davon ist, daß man die Winkel im Vakuum fest vorgibt, d.h. mit gerasteten Einstellungen arbeitet. Die Rasten sind bei der S-P-Drehung durch zwei Anschläge gegeben, bei Probe und Multiplier durch Zahnräder.

Durch das Rasten gibt man den Vorteil einer kontinuierlichen Winkeleinstellung auf. Bei manchen Messungen ist das ein Nachteil, etwa bei der Bestimmung des kritischen Winkels ⁽³⁴⁾ oder des Brewsterwinkels. Bei allen anderen Meßmethoden, bei denen mit festem Winkel gearbeitet wird, hat die diskrete Einstellung den Vorteil höherer Genauigkeit.

2.54 Aufbau des Reflektometers

S-P-Drehung und Grundgestell (Abb. 9)

Ein Tragring TR, der den Aufbau für die Winkeleinstellung trägt, ist auf zwei Stützen ST in Kugellagern gehalten. Er ist gezeichnet in S-Stellung (gestrichelt: P-Stellung). Das Licht fällt durch die Bohrung des vorderen Kugellagers K 1 ein. Die Achse der S-P-Drehung und die Lichtachse müssen zusammenfallen. Mit den Schrauben S 1 wird diese Justierung durchgeführt. Die Schrauben S 2 dienen zur Fixierung der Stellung.

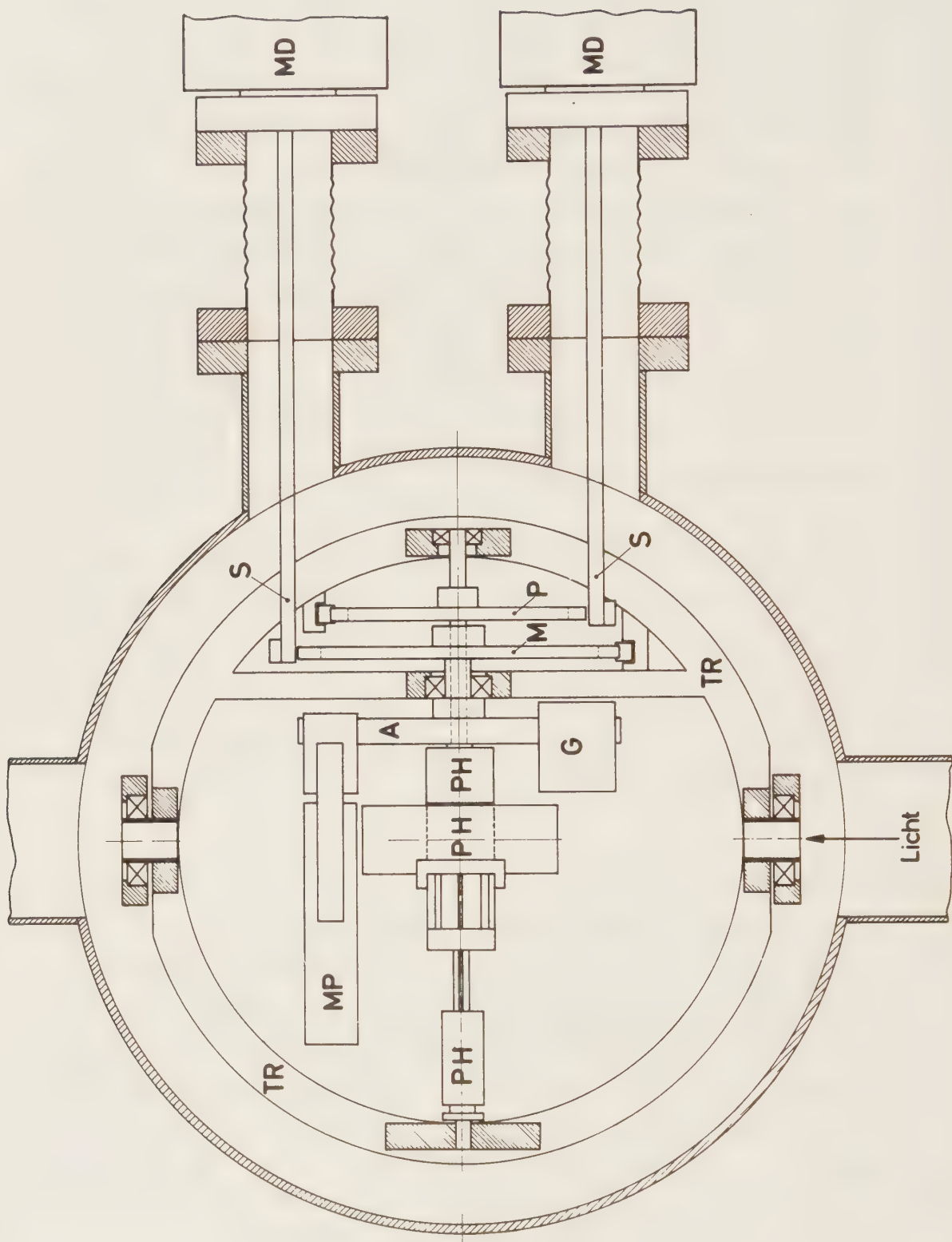


Abb. 10 Winkeleinstellung

An der Stelle T kann der Ring mitsamt den beiden Kugellagern vom Grundgestell getrennt werden. Dadurch ist es möglich, die Justierung des Reflektometers in sich und die Justierung des Reflektometers auf das einfallende Licht zu trennen. Ist letztere einmal durchgeführt und fixiert, so kann der ganze bewegliche Teil des Reflektometers herausgenommen und die Justierung der Drehachsen mit einem Laser durchgeführt werden.

Die S-P-Drehung wird über eine Katzenschwanzdrehdurchführung DF bewerkstelligt. Sie ist an das Reflektometer über eine flexible Kupplung angekoppelt.

Winkeleinstellung

Abb. 10 zeigt den Tragring TR mit der Winkeleinstellung in einem Schnitt in der Synchrotronebene (S-Stellung). P und M sind die Zahnräder, welche die Winkelstellung von Probe bzw. Multiplier festlegen. Der Multiplier MP ist auf einem Ausleger A befestigt und mit einem Gegengewicht G ausgewogen. Für photoelektrische Messungen wird das Gegengewicht entfernt und der Multiplier in die Mitte des Auslegers geschoben. Der Probenhalter PH wird dazu entfernt. Der Antrieb für die Winkeleinstellung erfolgt über die Schlüssel S, welche mit der magnetischen Drehdurchführung MD bewegt werden. Das Prinzip des Antriebs zeigt Abb. 11. S ist der Schlüssel, dessen Achse senkrecht zur Zeichenebene liegt. Eine volle Umdrehung des Schlüssels stellt das Zahnrad um einen Zahn weiter. In der gezeichneten Stellung ist der Antrieb ausgekoppelt und das Reflektometer kann in P-Stellung gefahren werden. Die Zahnräder für Multiplier und Probe haben verschiedenen Durchmesser, aber gleiche Zähnezahl, nämlich 48 Zähne. Damit können Winkel in Schritten von $7,5^\circ$ eingestellt werden.

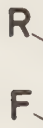


Abb. 12 Probenverschiebung

Probenverschiebung

Abb. 12 zeigt eine Skizze der Probenverschiebung. Die Probe PR sitzt in einem Schlitten S, der auch eine Vorrichtung zum Heizen HE trägt. Der Schlitten gleitet auf zwei Führungsstangen im Halter H, welcher starr, aber lösbar, mit der Achse der Probenbewegung verbunden ist. Über zwei Zugstangen ZS ist der Schlitten mit dem Zylinder Z verbunden. Auf der Achse A einer Drehdurchführung ist ein Gewinde. Auf diesem läuft eine Nuß N, die mit einem gefederten Bolzen gebremst ist. Der Bügel B greift in die Nut am Zylinder ein. In der gezeichneten Stellung wird die Probe durch Drehen an der Durchführung im Uhrzeigersinn nach links aus dem Strahlengang gezogen. Am Ende wird der Bügel durch eine halbe Linksdrehung in die Stellung B' gebracht. Das Reflektometer kann jetzt in die andere Polarisationsrichtung gefahren werden. Nach weiterem Linksdrehen greift der Bügel von der anderen Seite wieder in die Nut ein, und die Probe kann hineingefahren werden.

2.55 Materialien

Das Reflektometer wurde ganz aus rostfreiem Edelstahl gebaut. Als Federmaterial für die Rasten und die flexible Kupplung dient Molybdänblech. Die Kugellager sind Stahllager mit großer Lagerluft, bei denen die Käfige entfernt und durch Molybdändraht ersetzt wurden.

Es zeigte sich nach dem Ausheizen, daß an den Reiblagern (koaxiale Führung) Kaltverschweißung auftritt. Durch Einreiben mit trockenem Molybdändisulfid (Molykote) konnte das verhindert werden.

Die Zuführungsdrähte für Multiplier und Probenheizung bestehen aus dünnen, verdrehten Kupferdrähten, die mit Glasfasergewebe (Refrasil) isoliert sind.

2.56 Genauigkeit

Das Reflektometer kann, wie beschrieben, außerhalb der UHV-Anlage justiert werden. Zur Justierung wird dabei ein Laser verwendet. Die Einstellung des 0° -Winkels an der Probe geschieht durch Autokollimation. So kann der Winkel genauer als auf $0,1^\circ$ eingestellt werden. Die Genauigkeit der übrigen Winkelstellungen hängt von der Toleranz ab, mit der die Zahnräder gearbeitet sind. Da es nicht möglich ist, die einzelnen Winkelpositionen direkt nachzumessen, wurde die relative Genauigkeit der Einstellung von Probe und Multiplier überprüft. Dazu wurde vor den Multiplier ein Spiegel gebracht, der den Strahl in sich selbst reflektiert, so daß wie bei einer Autokollimationsmethode die Genauigkeit in allen Positionen überprüft werden kann.

Bei einer guten Einstellung sind die Abweichungen zwischen den Winkeln kleiner als $0,2^\circ$ über eine volle Umdrehung des Multipliers. Es dürfte mit einer nicht gerasteten Einstellung schwer sein, eine solche Winkelgenauigkeit zu erreichen. Besonders bei Reflexionsmessungen unter großem Einfallswinkel ist die Winklereinstellung kritisch, da dann die Reflektivität stark vom Winkel abhängt. In ungünstigen Fällen, z.B. bei $n \approx 1$, $k \ll 1$ (was bei Wellenlängen unter $500 \text{ \AA}$ oft auftritt), kann die Abweichung des Winkels um 1° bei 75° Einfallswinkel einen Fehler in der Reflektivität von über 20 % ausmachen.

2.6 Aufdampfung und Schichtdickenmessung

Das zur Messung verwendete Aluminium hat einen Reinheitsgrad von 99,999 %⁽³⁵⁾. Es wurde von Wolframdrähten verdampft. Vor dem Ausheizen wurde das Aluminium unter Vakuum eingeschmolzen. Während des Aufdampfens stieg der Druck in der Reflektometerkammer auf $1-2 \times 10^{-7}$ Torr an, sank aber nach Beendigung des Aufdampfvorgangs innerhalb

Die Schichtdicke wurde während des Aufdampfens mit Hilfe eines 6,5 MHz Quarz-Schichtdickenmeßgeräts verfolgt. Zur Eichung des Quarzes wurden mehrfach Schichten von 1000 - 2000 Å Dicke aufgedampft und mit einem Tolansky - Mikroskop vermessen. Diese Eichung kann mit einer Genauigkeit von ca. 3 % durchgeführt werden. Allerdings konnte das verwendete Schichtdickenmeßgerät bei einer Schichtdicke von 50 Å Aluminium nur auf etwa 10 % genau abgelesen werden, wodurch die Genauigkeit der Dickenbestimmung für so dünne Schichten begrenzt wurde.

3. Theoretische Aspekte

3.1 Allgemeines

Es gibt grundsätzlich zwei verschiedene Wege, die Plasmaschwingungen in Festkörpern zu betrachten. Der eine ist der phänomenologische Zugang über das dielektrische Verhalten des Festkörpers mit der DK $\epsilon(\omega, \vec{k})$ ⁽³⁶⁾. Die Energieverluste werden durch die Verlustfunktion $\text{Im}(1/\epsilon)$, die Plasmastrahlung durch die Übergangsstrahlung und die Plasmaresonanzabsorption durch die Elektrodynamik dünner Schichten beschrieben. Dieser Weg führt zu einer exakten Beschreibung der Vorgänge, liefert jedoch wegen der Komplexität der Formeln wenig Einblick in die physikalischen Mechanismen. Der andere Weg ist die Betrachtung über die mikroskopische Modellvorstellung der Plasmatheorie. Dieser hat durch die Theorie von Bohm und Pines ⁽²⁾ zu einem erweiterten Verständnis der Elektronenwechselwirkung im Festkörper geführt. Allerdings muß man sich, um das Modell anwendbar zu machen, oft auf sehr grobe Näherungen beschränken.

Im Fall der optisch angeregten Plasmaresonanzen ist es günstig, beide Wege zumindest teilweise zu beschreiten. Zum quantitativen Vergleich mit den Meßergebnissen ist die Berechnung mit den exakten Fresnel-Formeln am besten geeignet. Für das Verständnis der Elementarvorgänge in der Schicht verwendet man die Plasma-Modellvorstellung. Zur qualitativen Beschreibung der Strukturen in geeigneten Näherungen sind beide Wege gleichwertig.

3.2 Das optische Plasmon

Das Plasmon wird als Quasiteilchen durch seine Dispersionsrelation, d.h. die Abhängigkeit der Resonanzfrequenz ω vom Wellenvektor $\vec{k}$, und durch das Verhalten der Dämpfung beschrieben. Letzteres wird in den beiden folgenden Paragraphen behandelt. Hier soll kurz gezeigt

werden, wie man auf Grund sehr allgemeiner Überlegungen ein Bild von der Dispersionsrelation des optischen Plasmons erhalten kann.

Wir setzen ein Medium voraus, dessen Dielektrizitätskonstante sich in der Umgebung der Plasmafrequenz durch das Modell des freien Elektronengases

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} \quad (5)$$

beschreiben läßt, wobei die Dämpfungskonstante $\omega_p \cdot \gamma \ll 1$ sein soll. Dies ist für Al in guter Näherung erfüllt. Das Volumenplasmon hat dann die Resonanzfrequenz ω_p . Die Oberflächenschwingungen in dünnen Schichten zeigen jedoch eine andere Resonanzfrequenz, die stark vom Wellenvektor abhängt. In Abb. 13 ist die Dispersionsrelation für die beiden Zweige ω^- und ω^+ dargestellt⁽³⁷⁾. Die Schwingungsformen des elektrischen Feldes in der Schicht, welche den Zweigen ω^- und ω^+ entsprechen, zeigt Abb. 14a bzw. Abb. 14b⁽³⁸⁾. Diese beiden Schwingungsmodi können nicht an elektromagnetische Felder ankoppeln, da die beiden Zweige ganz unterhalb der Lichtgeraden liegen.

Die Feldverteilung für das optische Plasmon ist dieselbe wie in Abb. 14b für den Grenzfall $k \rightarrow 0$ ($l \rightarrow \infty$). Für $k = 0$ kann man die Eigenfrequenz des Plasmons wie folgt herleiten: Durch die Verschiebung der Ladungen um den Betrag x senkrecht zur Schichtebene werde die Schwingung angeregt. Man erhält eine Oberflächenladung der Größe

$$\sigma = n \cdot e \cdot x \quad (6)$$

wenn n die Zahl der Elektronen pro cm^3 ist und e ihre Ladung. Eine sehr dünne Schicht kann von den Feldern

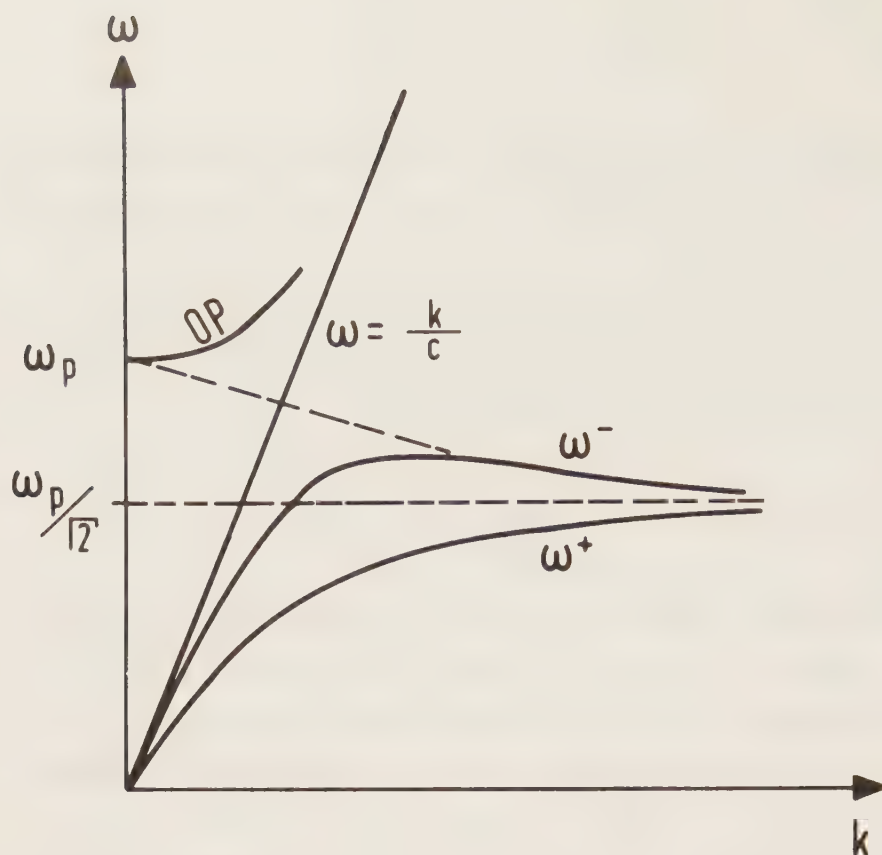


Abb. 13 Dispersionsrelationen für symmetrische (ω^-), anti-symmetrische (ω^+) Oberflächenschwingung und das optisch aktive Plasmon (OP)

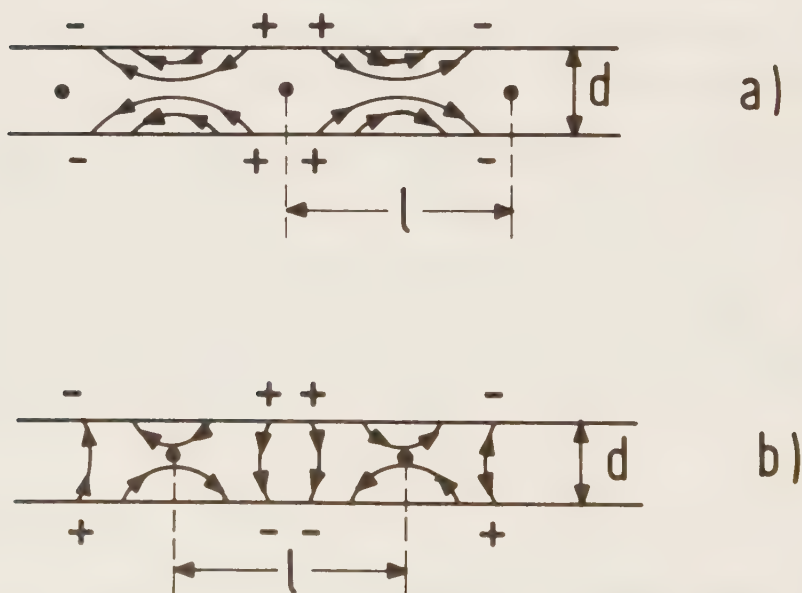


Abb. 14 Feldverteilung in der Schicht für Oberflächenplasmaschwingungen; a symmetrischer Typ, b anti-symmetrischer Typ.

durchdrungen werden, so daß auf jedes Elektron die Kraft

$$K = 4 \pi n e^2 x \quad (7)$$

wirkt. Setzt man

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = 4 \pi n e^2 x \quad (8)$$

so erhält man eine Schwingung mit der Eigenfrequenz

$$\omega_p = \frac{4 \pi n e^2}{m} . \quad (9)$$

Im Grenzfall unendlicher Wellenlängen schwingt das optische Plasmon also mit derselben Resonanzfrequenz wie das Volumenplasmon.

Den Verlauf der Dispersionskurve kann man durch folgende Betrachtung gewinnen: Aus Gründen der Impulserhaltung gilt, wenn $\vec{k}$ der Wellenvektor des Plasmons ist, der ganz in der Schichtebene liegt, und $\vec{k}_{ph}$ der des einfallenden Lichts

$$|\vec{k}| = |\vec{k}_{ph}| \cdot \sin \delta \quad (10)$$

(Fig. 15). Da

$$|k| = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{\omega}{v} \quad (11)$$

gilt, ist die Phasengeschwindigkeit v des Plasmons stets größer als die des Lichts oder aber gleich für $\delta = 90^\circ$. Bedenkt man, daß die Gruppengeschwindigkeit $d\omega/dk$ stets kleiner als die des Lichts sein muß, so erhält man qualitativ den Verlauf der Dispersionsrelation des optisch aktiven Plasmons, wie er in Fig. 13 dargestellt ist (OP).

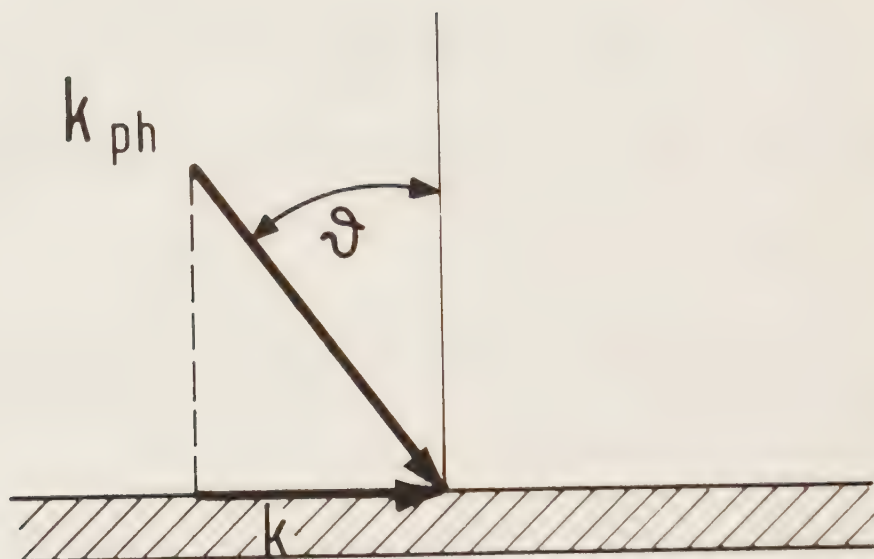


Abb.15 Impulserhaltung an der Schichtoberfläche

Diese Betrachtung mit Hilfe des Plasmon-Modells ist nur sinnvoll, solange die Lebensdauer des Quasiteilchens groß gegen die Wechselwirkungszeit in dem betrachteten Vorgang ist, also die Halbwertsbreite klein gegen die Resonanzfrequenz ist. Für große Einfallswinkel wächst aber die Dämpfung des Plasmons sehr schnell, so daß man für $\delta \rightarrow 90^\circ$ einen Verlauf der Dispersion erhält, der von dem hier beschriebenen abweicht (39,40).

3.3 Plasmaeffekt in Reflexion

Näherungsformeln für die optische Plasmaresonanz in Reflexion werden meist aus der Elektrodynamik dünner Schichten hergeleitet. Der Ausgangspunkt ist die Formel für den komplexen Reflektivitätskoeffizienten $\tilde{r}$ (komplexe Größen werden im folgenden durch eine Tilde gekennzeichnet) einer planparallelen Schicht, welche auf beiden Seiten von Vakuum umgeben ist (10). Für p-polarisiertes Licht erhält man

$$\tilde{r}_p = \frac{(\tilde{a}^2 - \tilde{b}^2) (1 - e^{-2\beta\tilde{b}})}{(\tilde{a} + \tilde{b})^2 - (\tilde{a} - \tilde{b})^2 e^{-2\beta\tilde{b}}} \quad (12)$$

wobei

$$\begin{aligned} \tilde{a} &= \tilde{\epsilon} \cos \phi \\ \tilde{b} &= \sqrt{\tilde{\epsilon} - \sin^2 \phi} \\ \beta &= \frac{2\pi}{\lambda} d \end{aligned} \quad (13)$$

ist. d ist die Dicke der Schicht und ϕ der Einfallswinkel. Durch geeignete Näherungen von beschränktem Gültigkeitsbereich kann Formel (12) vereinfacht werden. Das geschieht unter folgenden Gesichtspunkten:

1. Es interessiert das Verhalten in der Umgebung der Frequenz, für welche die DK verschwindet, nämlich der Plasmafrequenz ω_p .
Der Imaginärteil ϵ_2 der DK soll dort klein und unabhängig von ω sein. Der Realteil ϵ_1 läßt sich entwickeln, so daß gilt:

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_1'(\omega_p)(\omega - \omega_p) - i\epsilon_2 \quad (14)$$

2. Die Schichtdicke soll klein gegen die Wellenlänge sein, d.h.

$$\beta = \frac{2\pi d}{\lambda} \ll 1 \quad (15)$$

3. In der Umgebung der Plasmafrequenz gilt

$$|\tilde{\epsilon}| \ll \sin^2 \phi \quad (16)$$

für nicht zu kleine Einfallswinkel.

Entwickelt man die Exponentialfunktionen in (12) für kleine Schichtdicken und benutzt (14) und (16), so erhält man als Näherung für die Reflektivität R_p

$$R_p = |\tilde{r}_p|^2 = \frac{\gamma_r^2}{4(\omega - \omega_p)^2 + (\gamma_d + \gamma_r)^2} \quad (17)$$

mit den Abkürzungen

$$\begin{aligned} \gamma_d &= \frac{2}{\epsilon_1} \epsilon_2 \\ \gamma_r &= \frac{1}{\epsilon_1} \cdot \frac{2\pi d}{\lambda} \cdot \frac{\sin^2 \phi}{\cos \phi} \end{aligned} \quad (18)$$

Auf Grund eines Vergleiches mit der entsprechenden Formel, die mit Hilfe der Modellvorstellung der Plasmatheorie gewonnen wird (durchgeführt für den analogen

Fall der Plasmastrahlung ^(4,41)) wird die Bedeutung der γ_d und γ_r ersichtlich. Daraus folgt, daß γ_d die Dämpfung des Plasmons durch nichtstrahlende Zerfälle darstellt. Es ist der gleiche Dämpfungsterm, der auch bei Energieverlustexperimenten beobachtet wird. Die Dämpfung durch strahlenden Zerfall stellt γ_r dar. Bei Energieverlustmessungen tritt diese Dämpfung nicht in Erscheinung, da, wie gezeigt, das strahlende Plasmon auf sehr kleine $|\vec{k}|$ -Werte beschränkt ist. γ_r ist der Schichtdicke proportional und hängt vom Einfallswinkel ab. Durch Messung der Schichtdicken- oder Winkelabhängigkeit der Halbwertsbreite können die beiden Dämpfungskonstanten bestimmt werden.

An dieser Stelle soll eine Betrachtung über den Gültigkeitsbereich der Formel (17) durchgeführt werden. Für Aluminium kann dazu $\epsilon(\omega)$ durch ein Drudemodell (5) dargestellt werden. Dann ist:

$$\epsilon_1' = \frac{2}{\omega_p} \quad (19)$$

in die Formeln (18) einzusetzen. Aus dem Modell geht hervor, daß

$$\epsilon_2' = \epsilon_1' \cdot \frac{\gamma}{\omega} \quad (20)$$

ist, so daß für kleine Dämpfungen ϵ_2 im Vergleich zu ϵ_1 als konstant angenommen werden kann. Aus Formel (15) erkennt man, daß bei einer Plasmawellenlänge von 835 Å (Al) extrem dünne Schichten vorausgesetzt sind. Bei Schichtdicken über 50 Å (wo man noch von zusammenhängenden Schichten sprechen kann) ist (15) keine gute Näherung. Die Formel (16) beschränkt den Gültigkeitsbereich von (17) noch mehr. Für $\phi = 30^\circ$ ist bei Al nur zwischen 730 und 930 Å $|\vec{v}|$ kleiner als $\sin^2(30^\circ)$, so

daß die Näherung nur in einem Wellenlängenbereich von weit weniger als $200 \text{ \AA}$ brauchbar ist.

Bei der Entwicklung der Näherungsformel aus (12) ging aber noch mehr Information verloren. Für kleine Winkel findet man oberhalb von ω_p ein scharfes Minimum, das bekannte Brewster-Minimum. Es tritt auf, wenn der erste Faktor im Nenner von (12) klein ist

$$(\tilde{\epsilon} \cos \phi)^2 - (\epsilon - \sin^2 \phi) \approx 0 \quad (21)$$

also

$$\epsilon_1 = n^2 \tan^2 \phi \quad (22)$$

Im Modell des freien Elektronengases erhält man für die Brewsterfrequenz ω_B bei kleinem Einfallswinkel^(17,18)

$$\omega_B = \omega_p \cdot (1 - \tan^2 \phi)^{-1/2} \quad (23)$$

d.h. das Minimum liegt nahe bei der Plasmafrequenz. Die beiden hier erwähnten Strukturen, nämlich Plasmaresonanz und Brewsterminimum, treten beide bei s-polarisiertem Licht nicht auf. Hier erhält man nur den Anstieg der Reflektivität, wie er für das freie Elektronengas bei der Plasmafrequenz gefunden wird.

Die Formel (17) berücksichtigt als einzigen Beitrag zur Reflektivität in p-Polarisation den Plasmaeffekt. Vergleiche mit Messungen (4.1) zeigen, daß diese Näherung für Schichtdicken, bei denen man noch von zusammenhängenden Schichten sprechen kann, den tatsächlichen Verhältnissen nicht entspricht, da Brewsterminimum und Anstieg der Reflektivität beide in der Nähe der Plasmafrequenz liegen und die Struktur verändern. Glücklicherweise kann mit Hilfe elektronischer Rechenmaschinen die Berechnung nach Formel (12) exakt durchgeführt und mit dem Experiment verglichen werden.

Formel (17) bleibt jedoch brauchbar zum Verständnis des qualitativen Verlaufes und des Verhaltens bei verschiedenen Einfallswinkeln und Schichtdicken.

3.4 Plasmaeffekt in der Photoemission

Während sich die Reflektivität streng mit der Elektrodynamik dünner Schichten behandeln ließ, wobei als einziger Parameter die DK der Schichten eingeht, ist eine exakte Berechnung des Photoeffekts auf solch einfache Weise nicht möglich. Es zeigt sich aber, daß man mit Hilfe plausibler Näherungen und durch geeignete Normierung eine Formel ableiten kann, die das Verhalten in der Nähe der Plasmafrequenz beschreibt.

Das Auftreten einer Resonanz im Photoeffekt wird dem Zerfall des optischen Plasmons zugeschrieben, welche jedoch nur durch p-polarisiertes Licht angeregt wird. Man hat also die Möglichkeit, in Messung und Rechnung auf die Werte in s-Polarisation zu normieren. Dadurch vermeidet man erstens die Schwierigkeit einer Absolutmessung der Photoausbeute, zweitens werden sich bei der Rechnung alle die Faktoren herauskürzen, die von der Polarisationsrichtung unabhängig sind.

Den Ausgangspunkt der Überlegungen bildet die Annahme, daß der Hauptanteil des Photostroms in diesem Wellenlängengebiet einem Volumeneffekt zuzuschreiben ist, d.h. daß die Anzahl der Photoelektronen, die aus der Tiefe z der Schicht emittiert werden, der Anzahl der dort absorbierten Photonen proportional ist ^(21,42). Diese Annahme wird durch verschiedene Experimente gestützt ^(21,43).

Man erhält also

$$N'(\omega, \phi, \alpha, z) = \sigma(\omega, z) \varepsilon_2(\omega) |\vec{E}(\omega, \phi, \alpha, z)|^2 \quad (24)$$

Dabei ist N' , die Anzahl der aus der Tiefe z emittierten Elektronen, abhängig von der Frequenz ω , dem Einfallswinkel ϕ und der Polarisationsrichtung α ($\alpha = s$ oder p für s- bzw. p-Polarisation) des eingestrahnten Lichts. $\epsilon_2 |\vec{E}|^2$ stellt die Zahl der absorbierten Photonen dar. Der Faktor $\sigma(\omega, z)$ beschreibt die Anregungswahrscheinlichkeit der Photoelektronen und ihre Austrittswahrscheinlichkeit. Es ist dabei angenommen, daß diese Prozesse isotrop sind, so daß σ nicht von der Polarisation und dem Einfallswinkel abhängt. Integration von N' über das bestrahlte Volumen gibt die gesamte Anzahl N der emittierten Elektronen. Da man den Verlauf von σ mit z nicht kennt, muß man eine weitere Vereinfachung vornehmen: Die Energiedichte $|\vec{E}|^2$ ändert sich über Strecken von der Größenordnung der Wellenlänge λ des anregenden Lichts. Die freie Weglänge der Photoelektronen l liegt bei 10-100 Å (44,45). Man kann also annehmen, daß für $\lambda \gg l$ die Energiedichte in der Tiefe l noch etwa gleich der an der Oberfläche der Schicht ($z=0$) ist. Damit erhält man

$$N(\omega, \phi, \alpha) \approx \frac{F}{\cos \phi} \cdot \epsilon_2(\omega) \cdot |\vec{E}(\omega, \phi, \alpha, 0)|^2 \int_0^\infty \sigma(\omega, z) dz \quad (25)$$

wenn F die bestrahlte Fläche der Photokathode ist. Dividiert man den Wert des Photostroms für p-Licht durch den für s-Licht, so fällt der unbekannte Faktor $\sigma(\omega, z)$ weg:

$$\frac{N(\omega, \phi, p)}{N(\omega, \phi, s)} = \frac{|\vec{E}(\omega, \phi, p, 0)|^2}{|\vec{E}(\omega, \phi, s, 0)|^2} \quad (26)$$

Skibowski (17) berechnete die Energiedichte in einer Schicht für den Grenzfall $z \rightarrow 0$. Man erhält

$$|\vec{E}(\omega, \phi, p, 0)|^2 = |\vec{E}_0|^2 \left(\cos^2 \phi \cdot |1 - \tilde{r}_p|^2 + \frac{\sin^2 \phi}{|\tilde{e}|^2} |1 + \tilde{r}_p|^2 \right) \quad (27)$$

$$|\vec{E}(\omega, \phi, s, 0)|^2 = |\vec{E}_0|^2 \cdot |1 + \tilde{r}_s|^2 \quad (28)$$

für p- bzw. s-Licht, wobei $\vec{E}_0$ der elektrische Vektor des einfallenden Lichts ist.

Verwendet man dieselben Näherungen, die in 3.3. für den Plasmaeffekt in Reflexion benutzt worden sind, so erhält man (17,18)

$$|\vec{E}(\omega, \phi, p, 0)|^2 = |\vec{E}_0|^2 \frac{\omega_p^2 \sin^2 \phi}{4(\omega - \omega_p)^2 + (\gamma_r + \gamma_d)^2} \quad (29)$$

Der erste Term in (27) konnte wegen seiner Kleinheit gegenüber dem zweiten Term vernachlässigt werden. Für s-Polarisation wird in der verwendeten Näherung die Energiedichte unabhängig von der DK, so daß die Normierung überflüssig wird.

Man erhält wieder die Lorentz-Form für die Plasmaresonanz mit den beiden charakteristischen Dämpfungsgliedern wie in (17). Wie sich in den Messungen zeigt, wird die Form der Glockenkurve nicht so stark gestört wie in Reflexion. Man sieht das auch an der Form (27), wo die Reflektivität nur in den Termen $|1 + \tilde{r}_p|$ oder $|1 - \tilde{r}_p|$ auftritt, während die Resonanz hauptsächlich durch den Faktor $1/|\tilde{\epsilon}|^2$ bestimmt wird.

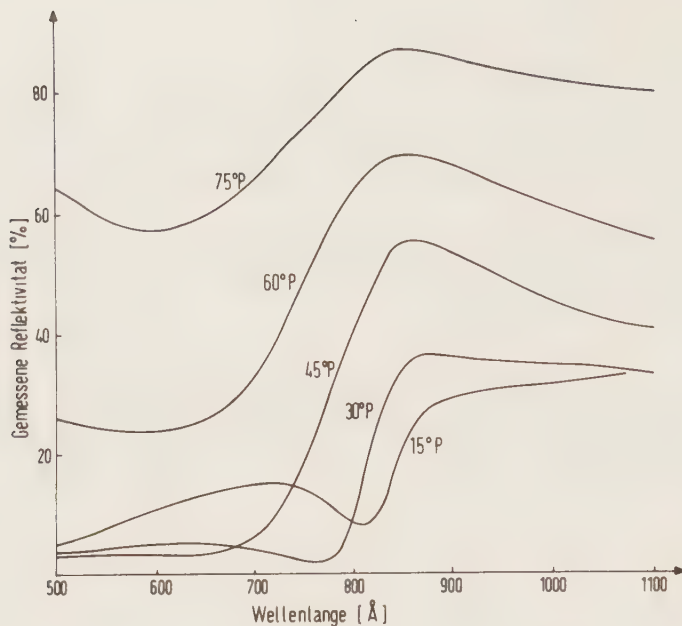


Abb. 16 Reflektivität einer Al-Schicht in p-Polarisation, Dicke ca. 100 Å auf Glas.

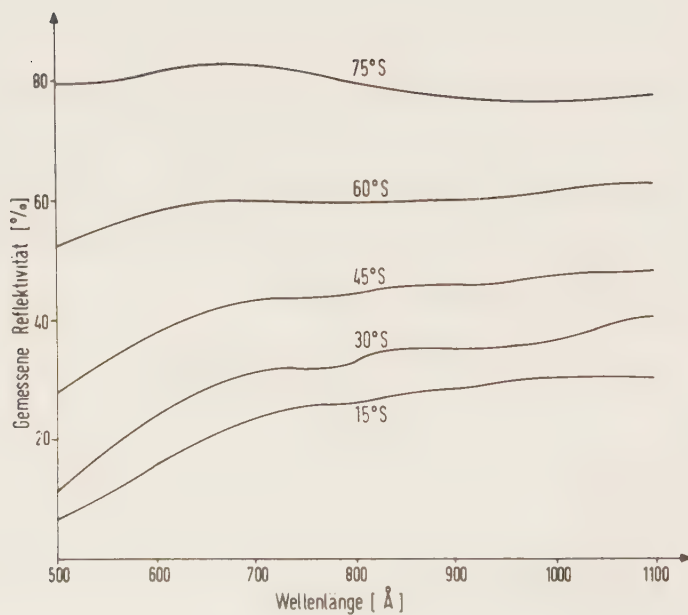


Abb. 17 Reflektivität einer Al-Schicht in s-Polarisation, Dicke ca. 100 Å auf Glas.

4. Messungen

4.1 Plasmaeffekt in Reflexion

Die Abbildungen 16 und 17 zeigen eine Messung der Reflektivität einer dünnen Aluminiumschicht zwischen 500 und 1100 Å für verschiedene Einfallswinkel. Die Kurven in Abb. 16 wurden in p-Polarisation, die in Abb. 17 in s-Polarisation gemessen. Die Dicke der aufgedampften Schicht betrug etwa 100 Å, wobei der Fehler in der Schichtdickenbestimmung mit ca. ± 15 Å anzugeben ist. Der Druck vor dem Aufdampfen und während der Messung betrug etwa $3 \cdot 10^{-9}$ Torr.

In s-Polarisation (Abb. 17) findet man keine ausgeprägte Struktur. Der Anstieg der Reflektivität bei der Plasmafrequenz ist bei so dünnen Schichten sehr flach, so daß er kaum in Erscheinung tritt. In p-Polarisation (Abb. 16) findet man jedoch die beiden erwarteten Strukturen: erstens das Brewsterminimum, das mit wachsendem Einfallswinkel gemäß Gleichung (23) zu kürzeren Wellenlängen wandert, und zweitens das Reflexionsmaximum in der Nähe der Plasmafrequenz (835 Å). Dieses tritt erst für Einfallswinkel, die größer als 45° sind, deutlich in Erscheinung.

Ausgeprägter ist der Plasmaeffekt an noch dünneren Schichten. In Abb. 18 wird eine Messung an einer ca. 60 Å dicken Schicht wiedergegeben. Hier findet man bei 60° Einfallswinkel bereits angenähert die für die Resonanz erwartete Glockenkurve.

Zu einem Vergleich der gemessenen Kurven mit Berechnungen benötigt man zunächst den Anschluß an die absoluten Reflektivitätswerte, der nach dem in 2.52 gesagten durch die Messung zunächst nicht gegeben ist. Durch eine einfache Methode kann man aber mit einer für diesen Fall ausreichenden Genauigkeit einen Absolutanschluß gewinnen (in den

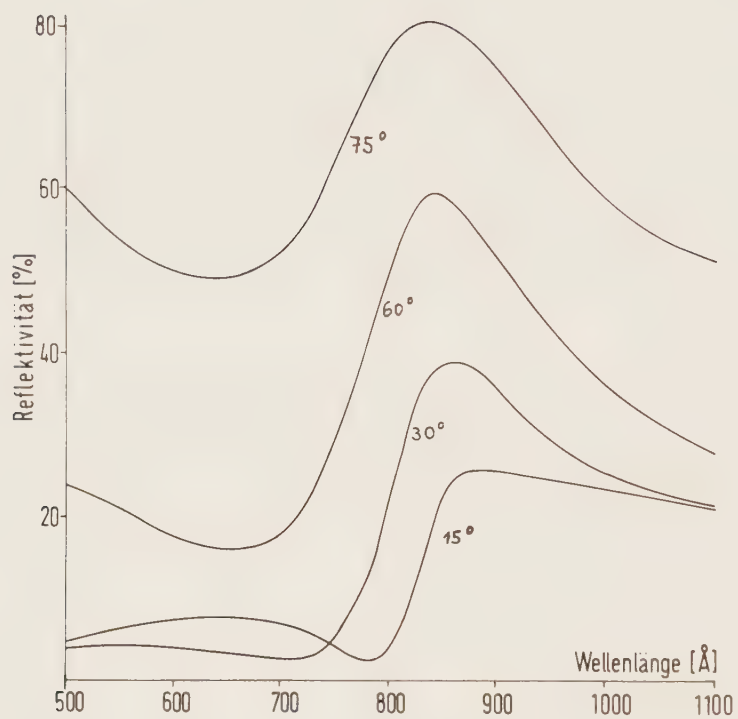


Abb. 18 Reflektivität einer Al-Schicht in p-Polarisation.
Dicke ca. 60 Å auf Glas.

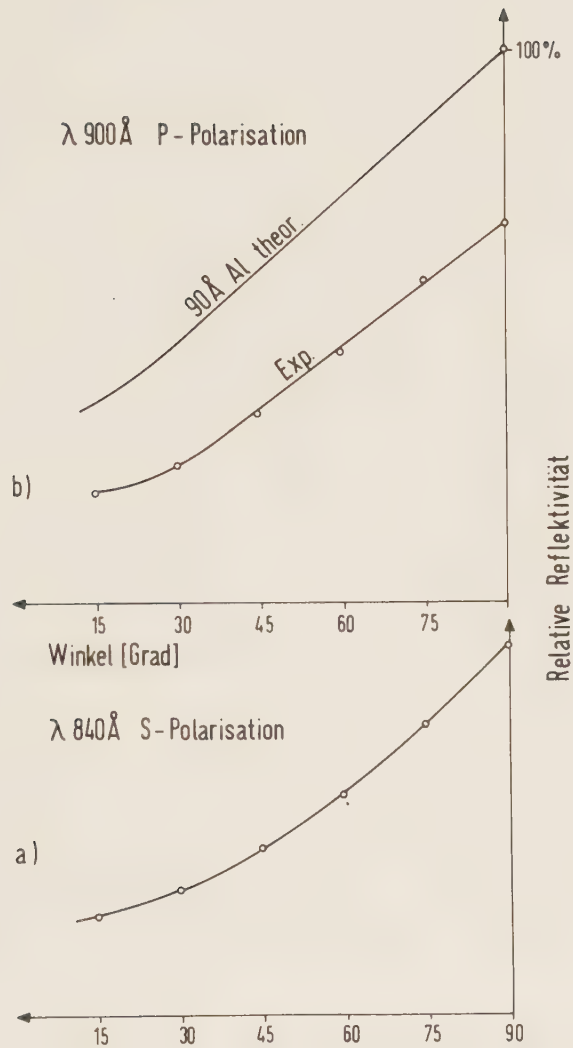


Abb. 19 Absolutanschluß der Reflektivitäten durch Extrapolation. a: s-Polarisation, $840 \text{ \AA}$; b: p-Polarisation, $900 \text{ \AA}$. Schichtdicke ca. $100 \text{ \AA}$.

gezeigten Kurven ist dies bereits durchgeführt). Dazu trägt man für eine bestimmte Wellenlänge die gemessenen Relativwerte für alle Winkel auf und extrapoliert nach 90° Einfallswinkel. Der so gewonnene Wert entspricht einer Reflektivität von 100 %. Die Kurven für s-Polarisation sind ziemlich glatt und verlaufen für Wellenlängen oberhalb der Plasmafrequenz flach genug, so daß man die Extrapolation mit genügender Genauigkeit durchführen kann; diese wurde in Abb. 19 a für $840 \text{ \AA}$ Wellenlänge durchgeführt. In p-Polarisation können die Kurven der Reflektivität gegen Einfallswinkel wegen der auftretenden Strukturen ungewohnte Formen annehmen, so daß eine Extrapolation fragwürdig wird. Man wählt deshalb möglichst eine Wellenlänge, bei der man eine günstige Kurvenform erhält. Die obere Kurve in Abb. 19b zeigt den berechneten Verlauf für $90 \text{ \AA}$ Schichtdicke bei $900 \text{ \AA}$ Wellenlänge. Sie verläuft ab 30° praktisch gradlinig. Die darunterliegende Kurve zeigt, wie die Extrapolation mit den gemessenen Werten für $900 \text{ \AA}$ Wellenlänge durchgeführt wurde.

Die Berechnung des theoretischen Verlaufs der Kurven wurde mit den exakten Formeln für das elektromagnetische Verhalten einer Mehrschicht nach Wolter ⁽⁴⁶⁾ durchgeführt. Für die optischen Konstanten von Al wurde ein Drude-Modell nach Formel (5) mit den Parametern

$$\lambda_p = \frac{2\pi c}{\omega_p} = 835 \text{ \AA}$$
$$\gamma = 1.35 \cdot 10^{15} \text{ sec}^{-1}$$

verwendet. Diese Parameter gaben bei Vehse et al. ⁽⁴⁷⁾ eine gute Anpassung an gemessene Reflektivitäten im Bereich $800 - 1400 \text{ \AA}$ und reproduzierten zwischen $500 - 900 \text{ \AA}$ mit ausreichender Genauigkeit ⁽¹⁷⁾ die von Ditchburn und Freeman ⁽⁴⁸⁾ gemessenen Werte der optischen Konstanten von Al. Für Glas, das als Unterlage dient, wurden optische Konstanten von Platzöder ⁽⁴⁹⁾ übernommen. Allen Berechnungen lag ein Polarisationsgrad von 90 % zugrunde. Das Ergebnis einer solchen Rechnung für $100 \text{ \AA}$

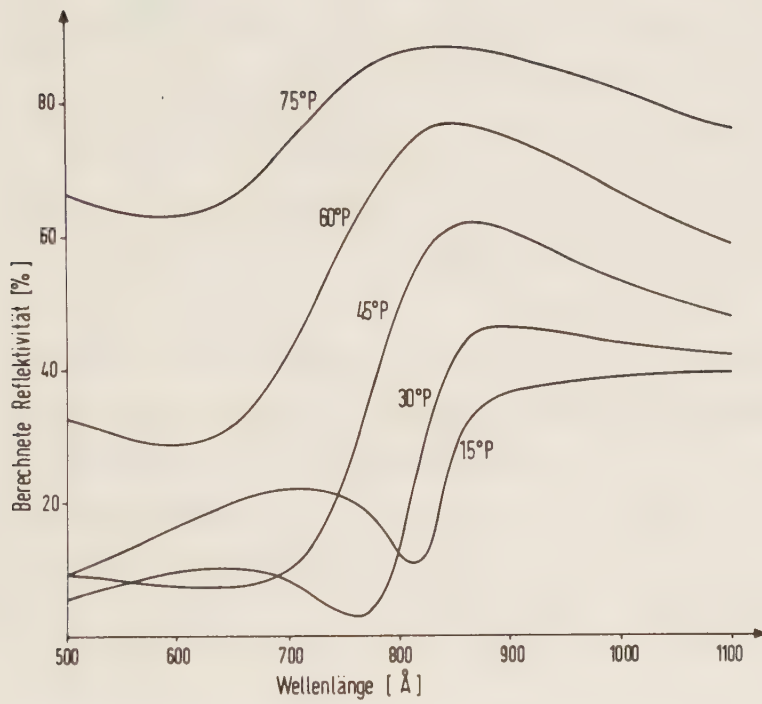


Abb. 20 Berechnete Reflektivität einer 100 Å dicken Al-Schicht auf Glas, p-Polarisation, Polarisationsgrad 0,9.

Schichtdicke und p-Polarisation ist in Abb. 20 dargestellt. Ein Vergleich mit Abb. 16 zeigt, daß die Strukturen in Messung und Rechnung gut übereinstimmen. Allerdings ist die gemessene Reflektivität etwas kleiner als man nach der Berechnung erwartet. Das kann teilweise dadurch begründet sein, daß die gemessene Schichtdicke nicht genau stimmt (für Schichten, deren Dicke klein gegen die Plaswellenlänge ist, wächst die Reflektivität in erster Näherung quadratisch mit der Schichtdicke). Andererseits muß man beachten, daß die Schicht sicher nicht völlig frei von Bedeckung war. Obwohl man, wie in 4.3 gezeigt werden wird, noch keine Monoschicht von Oxyd auf der Oberfläche hat, ist sicher eine teilweise Bedeckung vorhanden, wie auch Messungen bei besserem Vakuum ⁽⁵³⁾ zeigen.

In Abb. 21 ist das Ergebnis einer Berechnung der Reflektivität einer 100 Å dicken Al-Schicht auf Glas mit verschiedenen Oxydschichtdicken bei 30° Einfallswinkel in p-Polarisation dargestellt (die optischen Konstanten des Aluminiumoxyds wurden von Freeman ⁽⁵⁰⁾ übernommen). Man sieht, daß die Reflektivität bereits bei einer Bedeckung mit 5 Å Oxyd (was etwa einer Monoschicht entspricht) drastisch vermindert wird.

Daß es sich bei den Deckschichten, die bei schlechterem Vakuum auftreten, tatsächlich um Oxydschichten handelt, zeigt ein Vergleich der Abbildungen 21 und 22. Letztere zeigt die Veränderung der Reflektivität einer 100 Å dicken Al-Schicht auf Glas bei partieller Belüftung des Systems. Gemessen wurde ebenfalls bei 30° Einfallswinkel in p-Polarisation. Die erste Messung wurde ca. 5 min nach dem Aufdampfen durchgeführt. Dann wurde der Rezipient jeweils 5 min auf den angegebenen Druck mit Luft belüftet, wieder abgepumpt und anschließend die Messung durchgeführt. Der Vergleich zeigt, daß sich das Verhalten zwanglos durch das Aufwachsen einer Oxydschicht erklären läßt. Wie nach der Berechnung erwartet, flacht sich das Reflexionsmaximum bei zunehmender Oxydschichtdicke ab, während sich das Brewsterminimum verstärkt und zu größeren Wellenlängen verschiebt.

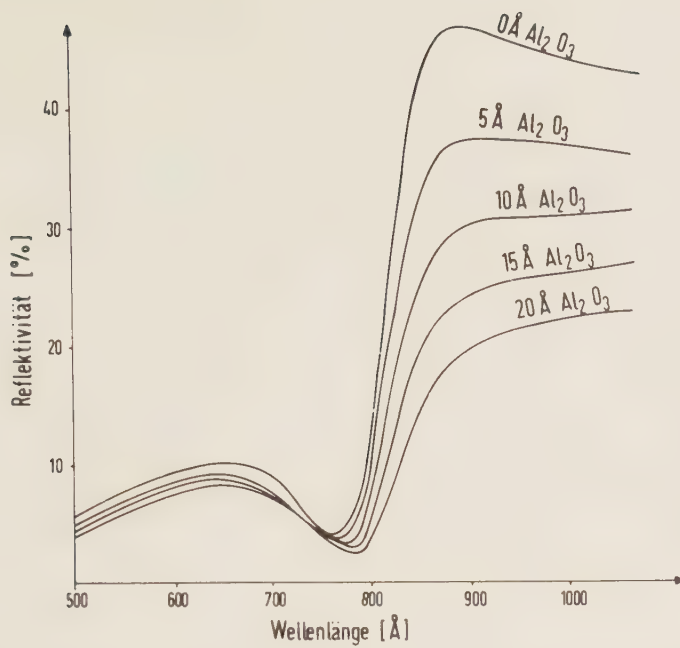


Abb. 21 Berechnete Reflektivität von 100 Å Al auf Glas mit verschiedenen Oxydschichtdicken. 30° Einfallswinkel, p-Polarisation, Polarisationsgrad 0,9.

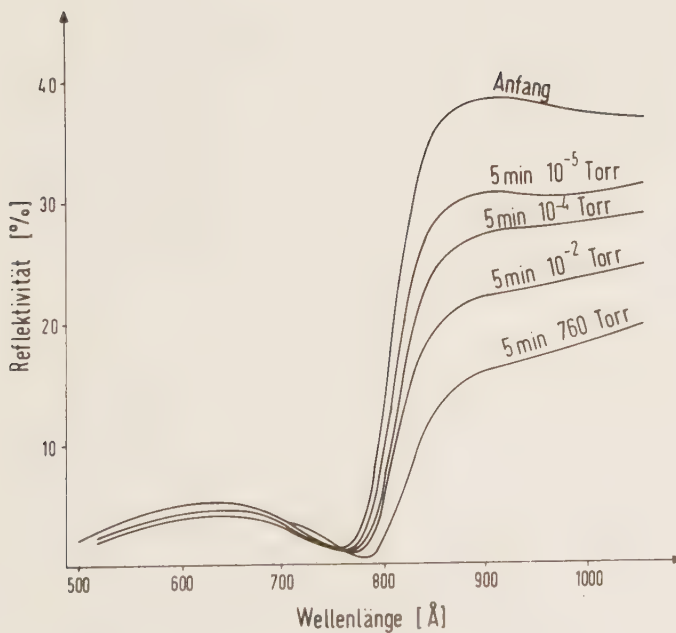


Abb. 22 Einfluß partieller Belüftung auf die Reflektivität einer ca. 100 Å dicken Al-Schicht auf Glas. Anfangsdruck 3×10^{-9} Torr, p-Polarisation, 30° Einfallswinkel.

4.2 Plasmaeffekt in Photoemission

Die Photoemission wurde mit der in 2.52 beschriebenen Methode gemessen, nämlich durch direktes Aufdampfen des Aluminiums als Photokathode im Bendix-Multiplier. Durch die Bauart des Multipliers ist der größte Einfallswinkel, bei dem noch gemessen werden kann, 45 Grad. Das stellt bei den hier durchgeführten Messungen aber keinen bedeutenden Nachteil dar, da die Höhe der erwarteten Resonanz mit wachsendem Einfallswinkel ein Maximum durchläuft und dann wieder fällt, wobei die Breite weiter wächst. Die höchste Resonanz erhält man bei einem Einfallswinkel, für den

$$\frac{\epsilon_2}{\beta} = \frac{\operatorname{tg}^2 \phi}{\cos \phi} \quad (30)$$

gilt, in derselben Näherung wie (29). In den vorliegenden Fällen liegt das Maximum bei etwa 30° .

Um den spektralen Verlauf der Photoemission zu erhalten, muß das gemessene Spektrum mit der Intensitätsverteilung des einfallenden Lichts normiert werden. Diese wurde durch eine Messung mit einem geschlossenen Multiplier gewonnen, welcher mit Natrium-Salizylat beschichtet war. Eine solche Anordnung hat in dem interessierenden Wellenlängenbereich eine einigermaßen konstante Empfindlichkeit (51). (Auf diese Weise normierte Kurven werden im folgenden als "gegen Na-Salizylat normiert" bezeichnet.)

Abb. 23 zeigt die Messung der Photoemission an einer ca. $50 \text{ \AA}$ dicken Al-Schicht auf Glas in p-Polarisation unter verschiedenen Einfallswinkeln, normiert gegen Na-Salizylat. Man findet ein ausgeprägtes Maximum bei der Plasmafrequenz. In s-Polarisation ist bei allen Einfallswinkeln der Verlauf ähnlich wie bei der 0° -Kurve. Um die Meßergebnisse mit den theoretischen Erwartungen nach 3.4 vergleichen zu können, muß man wie dort gegen

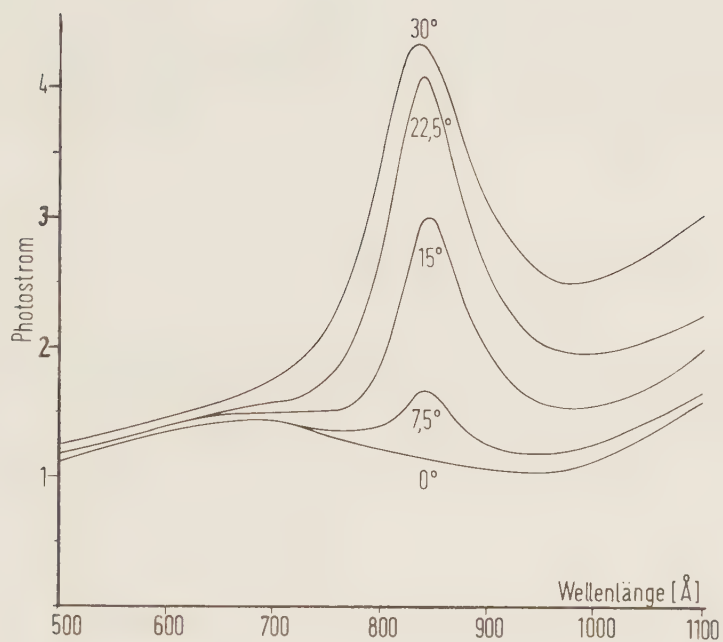


Abb. 23 Photoemission einer ca. 50 Å dicken Al-Schicht auf Glas, p-Polarisation, normiert gegen Na-Salizylat.

die Werte in s-Polarisation normieren. Dies wurde in Abb. 24 durchgeführt. Die Kurve für 0° Einfallswinkel wird jetzt zu einer leicht abfallenden Geraden. Auch hier erhält man nur angenähert die erwartete Lorentz-Form der Resonanzkurven. Auf der Seite der kurzen Wellenlängen ist der Anstieg durch die leichte Andeutung eines Brewsterminimums steiler. Abb. 24 zeigt außerdem die Messung für $37,5^\circ$ Einfallswinkel. Die Resonanz ist hier niedriger und breiter als bei den anderen Einfallswinkeln (ausgenommen $7,5^\circ$).

In Abb. 25 ist das Ergebnis einer Rechnung dargestellt, die nach Formel (26) durchgeführt wurde. Die Energiedichte⁽¹⁷⁾ wurde jedoch nicht nur an der Oberfläche, sondern für verschiedene Tiefen berechnet, mit einem Faktor für die Austrittswahrscheinlichkeit multipliziert und integriert. Es wurde exponentiell abnehmende Austrittswahrscheinlichkeit und eine Ausdringtiefe von $50 \text{ \AA}$ angenommen. Ein Vergleich mit Abb. 24 zeigt, daß das Verhältnis der Höhen und Breiten für verschiedene Einfallswinkel etwa gleich ist, die gemessenen Kurven jedoch breiter sind und durch das Brewsterminimum verformt werden. Diese Unterschiede sind teils wie bei der Reflexionsmessung auf eine partielle Oxydbedeckung zurückzuführen, welche das Brewsterminimum verstärkt und die Resonanz verbreitert, teils auf die Unzulänglichkeit des bei der Rechnung verwendeten Modells.

Die Messungen der Photoemission wurden für verschiedene Schichtdicken durchgeführt. Bei dickeren Schichten flacht sich das Maximum schnell ab. Eine Messung wurde mit einer Schicht von ca. $15 \text{ \AA}$ Dicke durchgeführt. Man fand ein breites Maximum in p-Polarisation bei etwa $1000 \text{ \AA}$, welches jedoch nicht das für einen Plasmaeffekt erwartete Verhalten bei Änderung des Einfallswinkels zeigte. Daraus kann man schließen, daß es sich noch nicht um eine zusammenhängende Aluminiumschicht gehandelt hat.

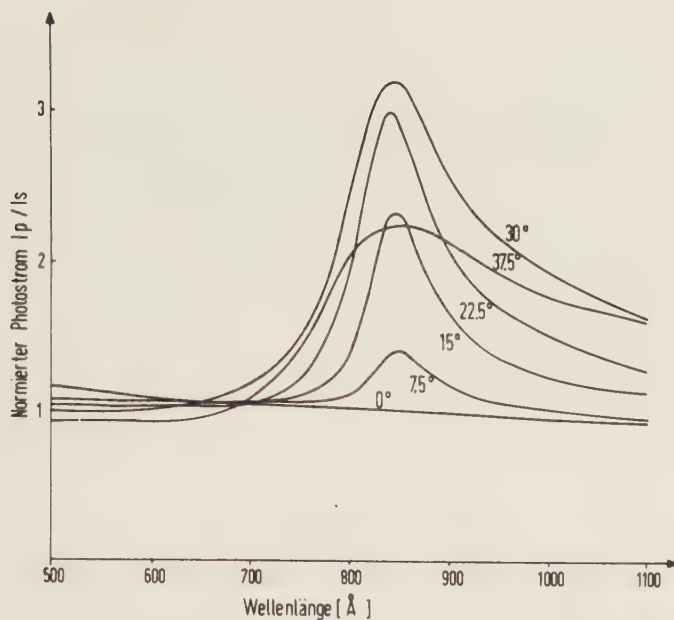


Abb. 24 Photoemission einer ca. 50 Å dicken Al-Schicht auf Glas. Photostrom in p-Polarisation mit dem in s-Polarisation normiert.

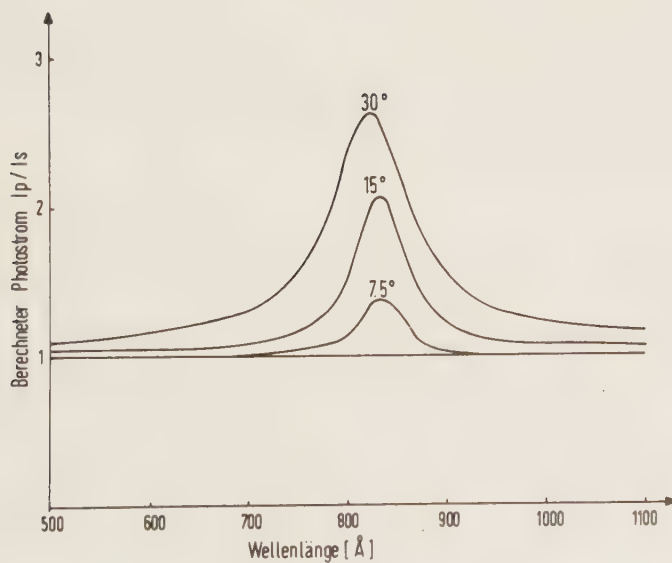


Abb. 25 Berechnete Photoemission einer 50 Å dicken Al-Schicht auf Glas, Werte in p-Polarisation mit denen in s-Polarisation normiert. Polarisationsgrad 0,9.

4.3 Oxydationseffekte

Um feststellen zu können, inwieweit die Messungen der optischen Plasmaeffekte wirklich die Vorgänge an reinen Metalloberflächen repräsentieren, wurde das Verhalten der Schichten bei sukzessiver partieller Belüftung studiert. Diese Belüftung wurde teils mit Luft, teils mit reinem Sauerstoff vorgenommen. In Paragraph 4.1 (Abb. 20) wurde bereits ein Beispiel einer solchen Messung aufgeführt.

Ein weiteres Beispiel in einer anderen Darstellungsweise zeigt Abb. 26. Hier wurde für eine bestimmte Wellenlänge, nämlich $850 \text{ \AA}$, die Veränderung der Reflektivität bei partieller Belüftung aufgezeichnet. Auf der Abszisse ist der Logarithmus des Produkts Druck $\times$ Zeit aufgetragen. Die obere Kurve wurde mit einer Schicht von $150 \text{ \AA}$ Dicke bei Belüftung mit Sauerstoff gewonnen, die untere an einer $100 \text{ \AA}$ dicken Schicht bei Belüftung mit Luft. Der Einfallswinkel war 30° in p-Polarisation. Dieselbe Messung in der Photoemission zeigt Abb. 27. Die Schichtdicke betrug $100 \text{ \AA}$, die Belüftung wurde mit Sauerstoff durchgeführt. Die Kurven sind für drei verschiedene Wellenlängen aufgetragen (wobei zugunsten der Übersichtlichkeit die Kurven in der Höhe verschoben wurden, so daß die Photostromwerte der verschiedenen Kurven nicht miteinander vergleichbar sind). Gemessen ist wieder bei 30° Einfallswinkel in p-Polarisation.

Auffallend ist in Abb. 27 der rapide Anstieg des Photostroms, der bei etwa 10^{-6} (Torr $\times$ min) einsetzt. Bis zur vollen Belüftung findet ein Anstieg um etwa zwei Größenordnungen statt. Solche Effekte konnten auch an Schichten beobachtet werden, die bei schlechterem Vakuum aufgedampft worden waren ⁽⁵¹⁾. Vergleicht man Abb. 27 und Abb. 26, so fällt auf, daß in beiden Fällen ein Knick bei etwa $1 \cdot 10^{-6}$ (Torr $\times$ min) auftritt, und zwar unabhängig davon,

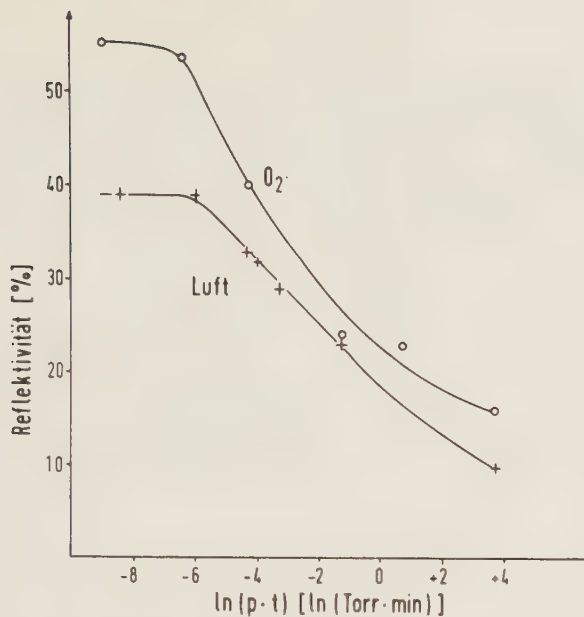


Abb. 26 Abnahme der Reflektivität von Al-Schichten bei partieller Belüftung. Wellenlänge 850 Å, p-Polarisation, 30° Einfallswinkel. Obere Kurve: Dicke 150 Å, Belüftung mit O_2 ; untere Kurve: Dicke 100 Å, Belüftung mit Luft.

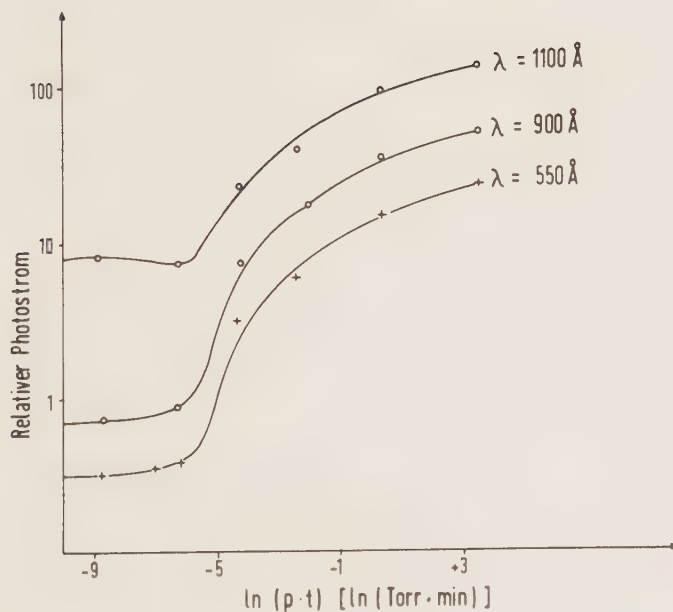


Abb. 27 Anstieg der Photoemission einer 100 Å dicken Al-Schicht bei partieller Belüftung mit O_2 für 3 Wellenlängen. 30° Einfallswinkel, p-Polarisation.

ob mit Luft oder Sauerstoff belüftet wurde. Vergleiche mit den Messungen von Huber und Kirk ⁽⁵³⁾ legen die Vermutung nahe, daß dieser Knick die Vollendung einer Monoschicht auf der Metalloberfläche andeutet. Die genannten Autoren fanden einen solchen Knick in der Austrittsarbeit, dem Massenzuwachs und dem Widerstand einer Al-Schicht im Laufe der Oxydation bei etwa demselben Wert ($p \cdot t$). Auch Messungen mit LEED, die von Jona ⁽⁵⁴⁾ durchgeführt wurden, zeigen, daß bei diesem Wert die Vollendung einer Monoschicht von Oxyd zu erwarten ist.

Man kann also den Schluß ziehen, daß die in 4.1 und 4.2 gezeigten Messungen mit großer Wahrscheinlichkeit an zumindest teilweise unbedeckten Metalloberflächen durchgeführt wurden. Der Grad der partiellen Bedeckung kann auf diese einfache Weise nicht festgestellt werden. Es zeigte sich bei den Messungen, daß der Bedeckungsgrad offensichtlich stark von den Aufdampfbedingungen abhängt und von Schicht zu Schicht variiert. Man kann das bei den Reflexionsmessungen durch Vergleich mit den theoretischen Kurven feststellen.

Eine Messung des spektralen Verhaltens der Photoemission im Laufe der Oxydation zeigt Abb. 28. Die Schichtdicke betrug $100 \text{ \AA}$, es wurde bei 30° Einfallswinkel in p-Polarisation gemessen. Die Kurven sind gegen Na-Salizylat normiert. Das Maximum bei der Plasmafrequenz ist bei dieser Schichtdicke schon sehr breit und flach. (Durch den logarithmischen Maßstab wird dies noch betont.)

Bei zunehmender Oxydation flacht das Maximum weiter ab, wogegen das Brewsterminimum wie in Reflexion ausgeprägter wird. Nach voller Belüftung erhält man einen ähnlichen Verlauf der Photoemission, wie er von Samson und Cairns ⁽⁵⁵⁾ an Al-Kathoden gemessen wurde. (Das Brewsterminimum fehlt in dieser Messung, da sie bei senkrechtem Einfall durchgeführt wurde.) Man kann aus Abb. 28 schließen, daß das von Samson und Cairns ⁽⁵⁵⁾ gemessene spektrale Verhalten mit dem breiten Maximum bei $800 \text{ \AA}$ auf das Aluminiumoxyd und

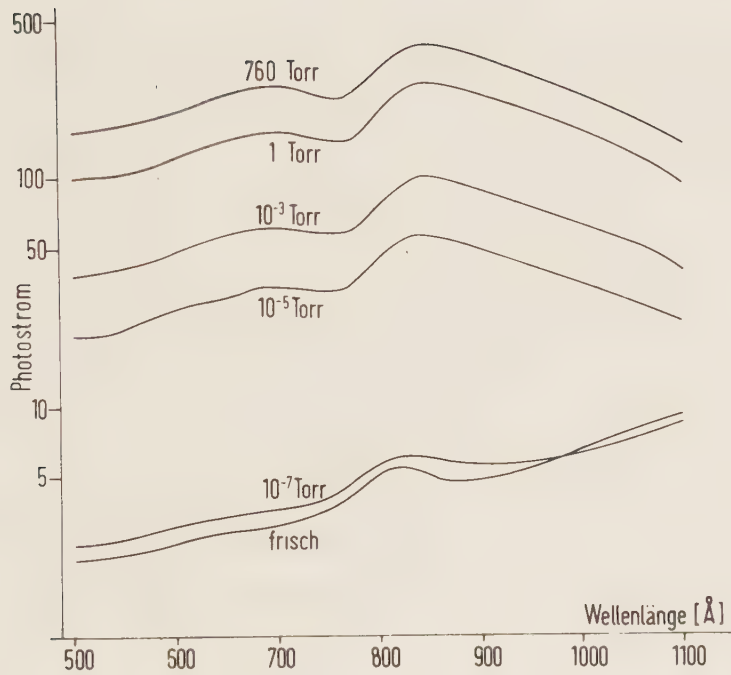


Abb. 28 Veränderung der spektralen Photoemission einer 100 Å dicken Al-Schicht bei partieller Belüftung mit Sauerstoff. 30° Einfallswinkel, p-Polarisation.

nicht auf das Aluminium selbst zurückzuführen ist (auch nicht auf einen Plasmaeffekt, wie es von Gornyi⁽⁵⁶⁾ vermutet wurde).

Zusammenfassung

Unter Ausnutzung der ausgezeichneten Eigenschaften der Synchrotronstrahlung als Lichtquelle ist es gelungen, zum ersten Mal mit polarisiertem Licht in fensterlosen Vakuum-ultraviolett Messungen im Ultrahochvakuum durchzuführen. Dazu wurde ein Reflektometer gebaut, das auf die speziellen Eigenschaften der Synchrotronstrahlung zugeschnitten und für Höchstvakuum geeignet ist. Mit diesem Reflektometer ist es möglich, die Reflektivität von in situ aufgedampften Proben in beiden Polarisationsrichtungen bei Einfallswinkeln zwischen $\pm 15^\circ$ und $\pm 82,5^\circ$ in Schritten von $7,5^\circ$ zu bestimmen. Außerdem kann die Photoausbeute frisch aufgedampfter Photokathoden in einem Winkelbereich von 0° bis $\pm 45^\circ$ gemessen werden.

Mit Hilfe dieser Apparatur konnte zum ersten Mal die optische Plasmaresonanz in Reflexion beobachtet werden. Dazu wurden Aluminiumschichten von 60 - 150 Å Dicke bei Drucken von $1-3 \cdot 10^{-9}$ Torr aufgedampft. Unmittelbar nach dem Aufdampfen wurde die Reflektivität bei fünf Einfallswinkeln zwischen 15° und 75° im Wellenlängenbereich von 500 bis 1100 Å in beiden Polarisationsrichtungen gemessen.

In p-polarisiertem Licht traten ausgeprägte Strukturen auf, die in s-Polarisation fehlten. Sie konnten als Brewster-minimum bzw. Plasmaresonanzmaximum gedeutet werden. Die Ergebnisse zeigen gute Übereinstimmung mit einer Berechnung der Reflektivität unter Verwendung bekannter Dielektrizitätskonstanten.

Die Plasmaresonanz im Photoeffekt an Aluminium konnte ebenfalls im Höchstvakuum gefunden werden. An Schichten von 10 Å bis 100 Å Dicke wurden Messungen der Photoemission bei sechs Einfallswinkeln zwischen 0° und $37,5^\circ$ in beiden Polarisationsrichtungen vorgenommen. In p-Polarisation tritt für Schichtdicken um 50 Å ein ausgeprägtes Maximum bei der Plasmafrequenz auf, welches ungefähr eine Lorentzform aufweist. Der Verlauf der Wellenlängen- und Winkelabhängigkeit ist qualitativ so, wie man nach Berechnung der Energiedichte in der Schicht erwartet.

Der Einfluss von Deckschichten auf Reflexion und Photoemission im Wellenlängenbereich von 500 bis 1100 Å wurde durch schrittweise partielle Belüftung mit Sauerstoff und Luft studiert. Messungen in Reflexion, welche mit exakten Rechnungen verglichen werden können, zeigen, daß sich die auftretenden Veränderungen durch das Wachsen einer Oxidschicht erklären lassen. Aus der Beobachtung der schrittweisen Oxydation bei konstanter Wellenlänge kann der Schluß gezogen werden, daß die Messungen im Höchstvakuum an zumindest teilweise unbedeckten Metalloberflächen durchgeführt worden waren.

Literaturverzeichnis

- 1 Raether, H., Springer Tracts Mod. Phys. 38, 84 (1965)
- 2 Pines, D., "Elementary Excitations in Solids",
New York, 1963
- 3 Ritchie, R.H., Phys. Rev. 106, 874 (1957)
- 4 Ferrell, R.A., Phys. Rev. 111, 1214 (1958)
- 5 Steinmann, W., Phys. Rev. Letters 5, 470 (1960)
- 6 Arakawa, E.T., N.O. Davis, R.D. Birkhoff,
Phys. Rev. Letters 12, 319 (1964)
- 7 Brown, R.W., P. Wessel, E.P. Trownson,
Phys. Rev. Letters 5, 472 (1960)
- 8 Arakawa, E.T., N.R. Hamm, W.F. Hanson, T.M. Jelinek,
Opt. Prop. and Electr. Struct. of Metals
and Alloys, F. Abeles (Editor)
Amsterdam 1966, S. 374
- 9 Ferrell, R.A., E.A. Stern, Am. J. Phys. 30, 810 (1963)
- 10 Yamaguchi, S., J. Phys. Soc. Japan 18, 266 (1963)
- 11 Matsudaira, N., J. Phys. Soc. Japan 18, 380 (1963)
- 12 McAlister, A.I., E.A. Stern, Phys. Rev. 132, 1599 (1963)
- 13 Hattori, M., K. Yamada, H. Suzuki,
J. Phys. Soc. Japan 18, 203 (1963)
- 14 Mayer, H., H. Thomas, Z. Physik 147, 419 (1957)
- 15 Deichsel, H., Z. Physik 174, 136 (1963)
- 16 Ejiri, A., T. Sasaki, J. Phys. Soc. Japan 20, 876 (1964)
- 17 Skibowski, M., Dissertation Univ. München 1967
- 18 Skibowski, M., B. Feuerbacher, R.P. Godwin, W. Steinmann
Z. Physik (im Druck)
- 19 Brambring, J., Z. Physik 200, 186 (1967)
- 20 Tittel, H.O., Phys. Letters 26A, 145 (1968)
- 21 Ives, H.E., H.B. Briggs, J. Opt. Soc. Am. 26, 247 (1936)
Ives, H.E., H.B. Briggs, J. Opt. Soc. Am. 28, 330 (1938)

- 22 Steinmann, W., M. Skibowski, Phys. Rev. Letters 16, 989 (1966)
- 23 Skibowski, M., W. Steinmann, J. Opt. Soc. Am. 57, 112 (1967)
- 24 Haensel, R., C. Kunz, Z. angew. Physik 23, 276 (1967)
- 25 Haensel, R., B. Sonntag, J. Appl. Phys. 38, 3031 (1967)
- 26 Haensel, R., C. Kunz, unveröffentlicht
- 27 Rosenbaum, G., Diplomarbeit Univ. München 1968
Rosenbaum, G., B. Feuerbacher, R.P. Godwin, M. Skibowski,
wird veröffentlicht
- 28 Godwin, R.P., unveröffentlicht
- 29 Madden, R.P., L.R. Canfield
J. Opt. Soc. Am. 51, 838 (1961)
- 30 Marton, L., J. Toots, Phys. Rev. 160, 602 (1967)
- 31 Heroux, L., H.E. Hinteregger,
Rev. Sci. Instr. 31, 280 (1960)
- 32 Hunter, W.R., Appl. Optics 6, 2140 (1967)
- 33 Feuerbacher, B., R.P. Godwin, T. Sasaki, M. Skibowski,
wird veröffentlicht
- 34 Hunter, W.R., J. Opt. Soc. Am. 54, 208 (1964)
- 35 von Fa. Degussa, Hanau
- 36 Froehlich, H., Max Planck Festschrift 1958, S. 277
- 37 Romanov, Y.A., Radiofiziky 7, 828 (1964)
- 38 Stern, E.A., R.A. Ferrell,
Phys. Rev. 120, 130 (1960)
- 39 Steinmann, W., Opt. Prop. and Electr. Struct. of
Metals and Alloys, F. Abeles (Editor)
Amsterdam 1966 S. 399
- 40 Kliever, K.L., R. Fuchs, Phys. Rev. 153, 498 (1967)
- 41 Stern, E.A., Phys. Rev. Letters 8, 7 (1962)
- 42 Fan, H.Y., Phys. Rev. 68, 43 (1945)

- 43 Juenker, D.W., H.P. Waldron, R.J. Jaccodine
J. Opt. Soc. Am. 54, 216 (1964)
- 44 Quinn, J.J., Phys. Rev. 126, 1453 (1962)
- 45 Spitzer, W.G., C.R. Crowell, M.M. Atalla,
Phys. Rev. Letters 8, 57 (1962)
- 46 Wolter, H., Handbuch der Physik, S. Flügge (Editor)
24, 461 (1956)
- 47 Vehse, R.C., E.T. Arakawa, I.L. Stanford
J. Opt. Soc. Am. 57, 551 (1967)
- 48 Ditchburn, R.W., G.H.C. Freeman
Proc. Roy. Soc. A294, 20 (1966)
- 49 Platzöder, K., W. Steinmann (im Druck)
- 50 Freeman, G.H.C., Brit. J. Appl. Phys. 16, 927 (1965)
- 51 Samson, J.A.R., "Vacuum Ultraviolet Spectroscopy"
John Wiley & Sons, New York 1967, S. 214
- 52 Feuerbacher, B., M. Skibowski, R.P. Godwin, W. Steinmann
J. Opt. Soc. Am. 58, 137 (1968)
- 53 Huber, E.E., Jr., C.T. Kirk, Jr.,
Surface Science 5, 447 (1966)
- 54 Jona, F., J. Phys. Chem. Solids 28, 2155 (1967)
- 55 Samson, J.A.R., R.B. Cairns, Rev. Sci. Instr. 36, 19 (1965)
- 56 Gornyi, N.B. Sov. Phys. Solid State 8, 1535 (1966)

Diese Arbeit wurde innerhalb einer Gastgruppe der Universität München am Deutschen Elektronen-Synchrotron in Hamburg durchgeführt. Für die großzügige Gastfreundschaft bin ich Herrn Prof. Dr. Jentschke und Herrn Prof. Dr. Stähelin sowie Herrn Dr. Haensel und Herrn Dr. Kunz von Herzen dankbar.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. Rollwagen, bin ich für die Überlassung des Themas und die vertrauensvolle Förderung der Arbeit verpflichtet. Herrn Privatdozent Dr. Steinmann danke ich für viele Anregungen und seine tatkräftige Unterstützung.

Mein besonderer Dank gilt meinen Mitarbeitern, Herrn Dr. Skibowski und Herrn Dr. Godwin für ihre aufopfernde Hilfe bei den Messungen und die selbstverständliche Unterstützung bei allen auftretenden Schwierigkeiten. Herrn Prof. Dr. Sasaki verdanke ich viele hilfreiche Hinweise.

Nicht zuletzt möchte ich dem Bayerischen Staatsministerium für Unterricht und Kultus sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft für finanzielle Unterstützung danken.

Lebenslauf

Am 15. 4. 1940 wurde ich in Dresden geboren. Mein Vater, Erwin Feuerbacher, ist kaufmännischer Angestellter, meine Mutter Anneliese, geb. Meuth, ist Hausfrau.

Meine Familie verließ 1945 Dresden und zog nach Stuttgart. Dort besuchte ich von 1946 bis 1950 die Grundschule. 1950 trat ich in das humanistische Eberhard Ludwigs-Gymnasium in Stuttgart ein, wo ich nach neun Schuljahren die Reifeprüfung ablegte. Anschließend leistete ich einen 18-monatigen Wehrdienst ab. Mit dem Dienstgrad eines Fähnrichs wurde ich entlassen.

Vom Jahre 1960 an studierte ich Physik an der Universität München. Nach 12 Semestern beendete ich dort das Studium mit der Diplomprüfung. Im Frühjahr 1966 heiratete ich meine Frau Christa, geb. Eschke. Im November 1966 wurde unser Sohn Michael geboren.

Seit August 1966 bin ich mit der Ausführung meiner Doktorarbeit beschäftigt, welche ich teilweise als Gast am Deutschen Elektronen-Synchrotron in Hamburg durchführte.

Berndt Feuerbacher

